

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-230132

(P2000-230132A)

(43)公開日 平成12年8月22日(2000.8.22)

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード*(参考)

C 0 9 B 23/00

C 0 9 B 23/00

E

C 0 7 C 211/56

C 0 7 C 211/56

J

217/92

217/92

223/06

223/06

審査請求 未請求 請求項の数60 O L (全 148 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平11-312069
 (22)出願日 平成11年11月2日(1999.11.2)
 (31)優先権主張番号 特願平10-347561
 (32)優先日 平成10年12月7日(1998.12.7)
 (33)優先権主張国 日本(J P)

(71)出願人 000002185
 ソニー株式会社
 東京都品川区北品川6丁目7番35号
 (72)発明者 市村 眞理
 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
 ー株式会社内
 (72)発明者 田村 眞一郎
 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
 ー株式会社内
 (74)代理人 100076059
 弁理士 逢坂 宏

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物及びその合成中間体、並びにこれらの製造方法

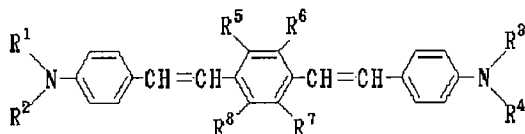
(57)【要約】

【課題】 強い発光を呈し、黄色～赤色の発光材料となりうるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物と、その一般的かつ高効率な製造方法を提供すること。

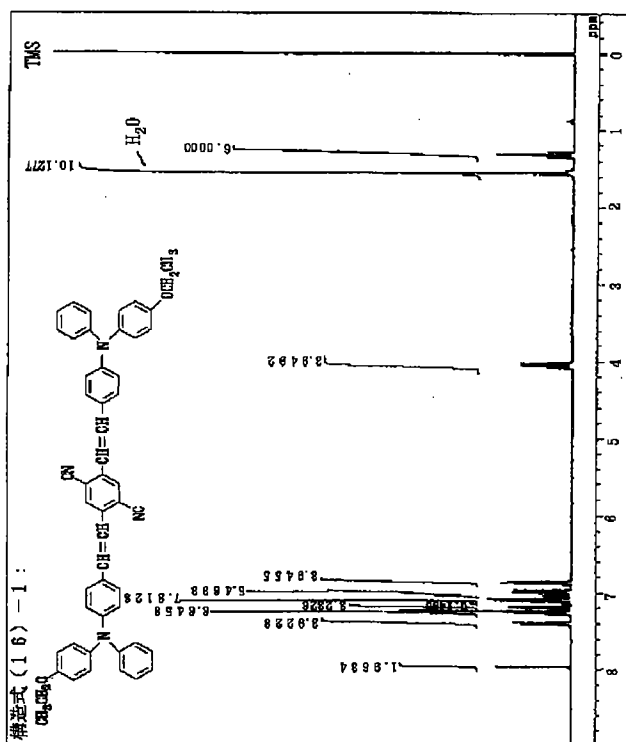
【解決手段】 下記一般式〔I〕等で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物。例えば4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドとジホスホン酸エステル又はジホスホニウムとの縮合による製造方法。

【化285】

一般式〔I〕:



(但し、前記一般式〔I〕において、R²及びR³は無置換のアリール基であり、R¹及びR⁴はエトキシ基などの特定の置換基を有するアリール基、R⁵～R⁸はシアノ基などの基である。)



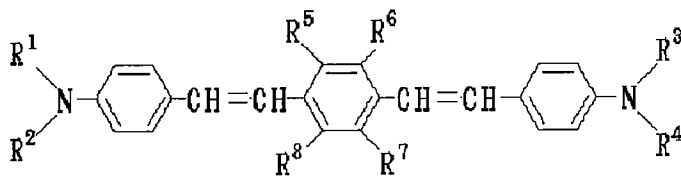
【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化

合物。

【化1】

一般式〔I〕：

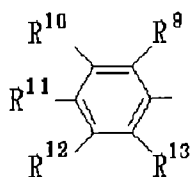


〔但し、前記一般式〔I〕において、R²及びR³は無置換のアリール基であり、R¹及びR⁴は下記一般式

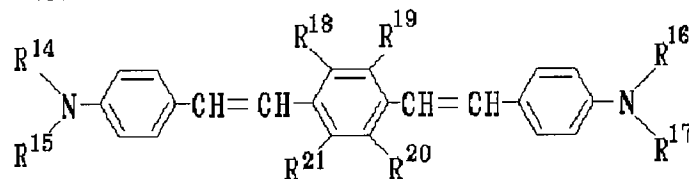
(1)で表わされるアリール基であり

【化2】

一般式(1)：



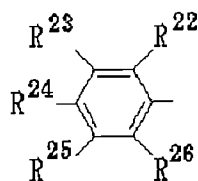
一般式〔II〕：



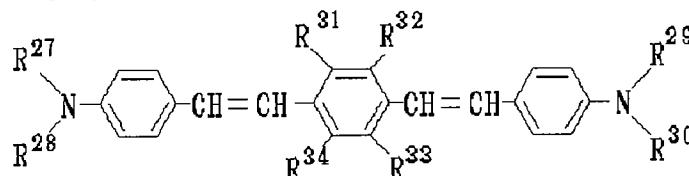
〔但し、前記一般式〔II〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(2)で表されるアリール基であり

【化4】

一般式(2)：



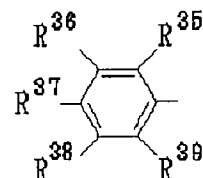
一般式〔III〕：



〔但し、前記一般式〔III〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも1つが下記一般式(3)で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化6】

一般式(3)：



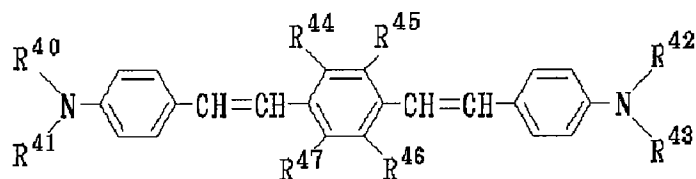
〔但し、前記一般式(3)において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であっ

素アミノ基である。)、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 及び R^{34} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子

である。]

【化7】

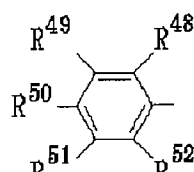
一般式 (IV) :



〔但し、前記一般式 (IV) において、 R^{41} 及び R^{42} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表されるアリール基であり

【化8】

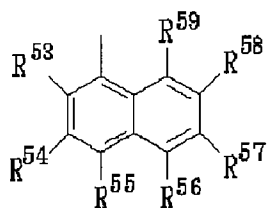
一般式 (4) :



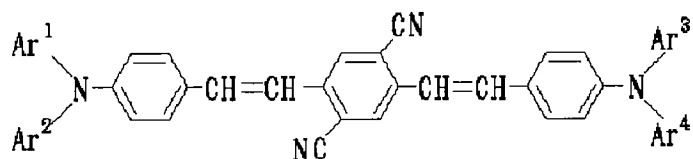
〔但し、前記一般式 (4) において、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 、 R^{51} 及び R^{52} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{40} 及び R^{43} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (5) で表されるアリール基であり

【化9】

一般式 (5) :



一般式 :



〔但し、前記一般式において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (6)、(7)、(8) 及び (9) で表されるアリール基から選ばれた基である。

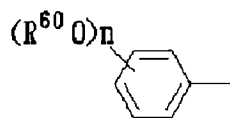
【化11】

〔但し、前記一般式 (5) において、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

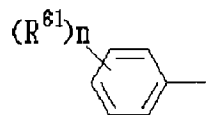
【請求項2】 下記一般式で表される、請求項1に記載したビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物。

【化10】

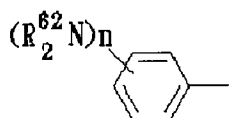
一般式（６）：



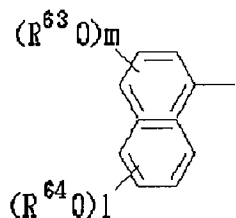
一般式（７）：



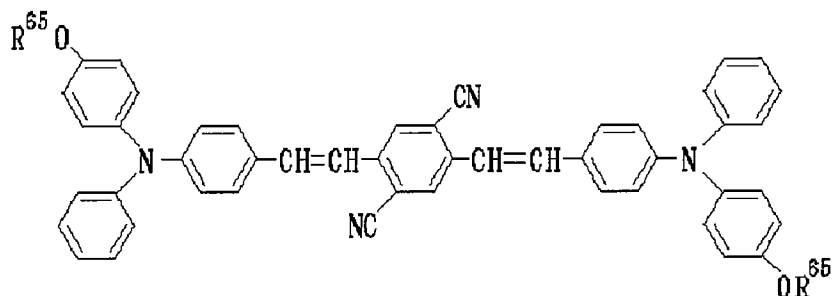
一般式（８）：



一般式（９）：



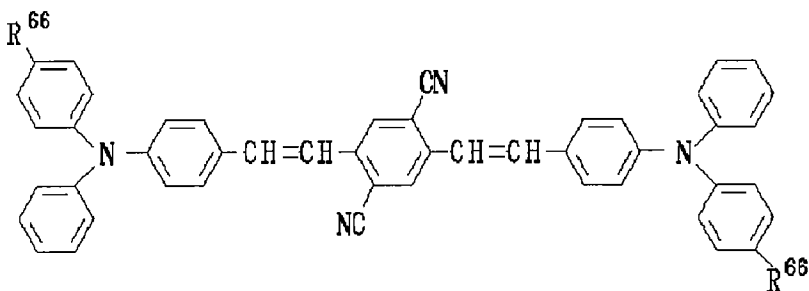
一般式（１０）：



（但し、前記一般式（１０）において、 R^{65} は炭素数２～６の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化１３】

一般式（１１）：



（但し、前記一般式（１１）において、 R^{66} は炭素数１～６の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化１４】

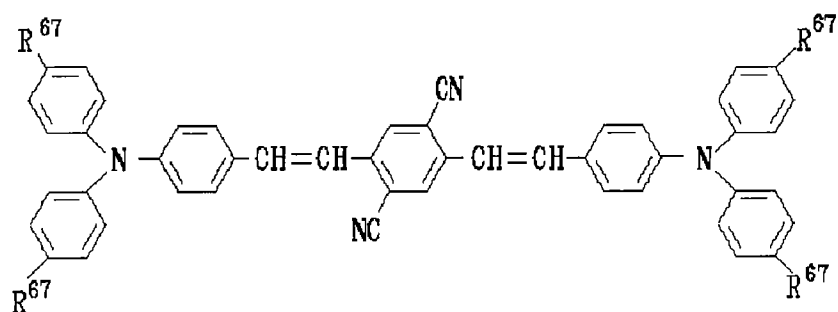
（但し、前記一般式（６）、（７）、（８）及び（９）において、 R^{60} は炭素数２以上の飽和又は不飽和の炭化水素基（或いは、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 のすべてが一般式（６）のアリール基である場合には、 R^{60} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基）であり、 R^{61} 及び R^{62} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{63} 及び R^{64} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は０～５の整数であり、 m は０～３の整数であり、 l は０～４の整数である。）

【請求項３】 前記 R^{60} の炭素数が２～６であり、前記 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{63} 及び R^{64} の炭素数が１～６である、請求項２に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物。

【請求項４】 下記一般式（１０）、（１１）、（１２）、（１３）、（１４）、（１５）又は（１５'）で表される、請求項２に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物。

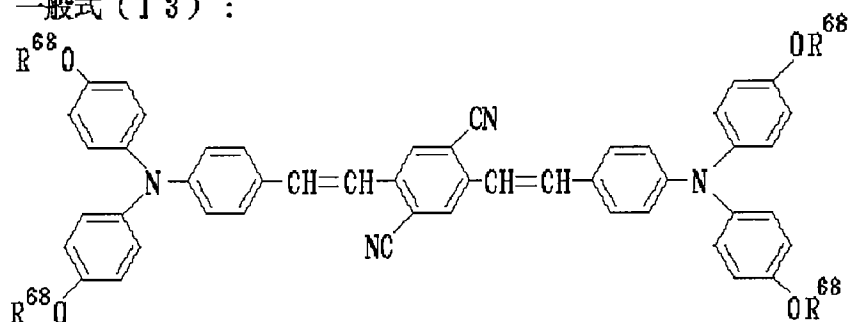
【化１２】

一般式 (12) :



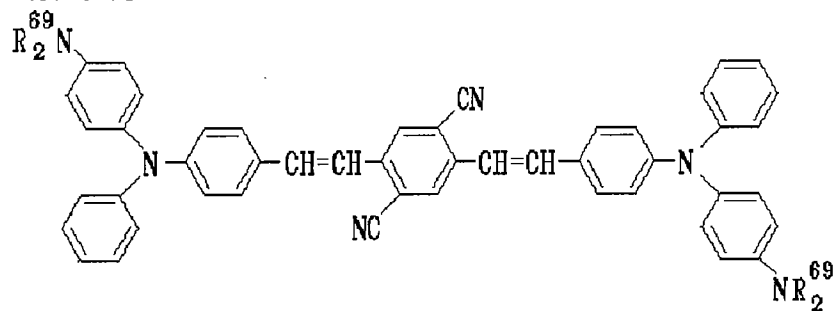
(但し、前記一般式 (12) において、R⁶⁷は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化15】

一般式 (13) :



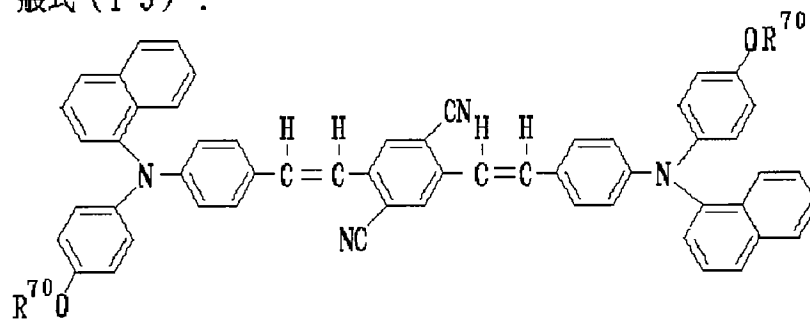
(但し、前記一般式 (13) において、R⁶⁸は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化16】

一般式 (14) :



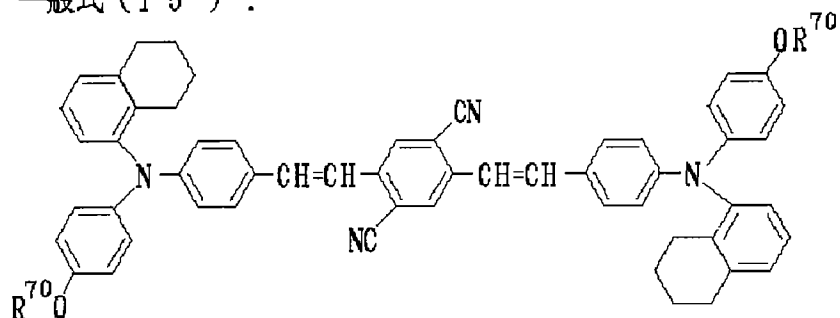
(但し、前記一般式 (14) において、R⁶⁹は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化17】

一般式 (15) :



(但し、前記一般式 (15) において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化18】

一般式(15') :



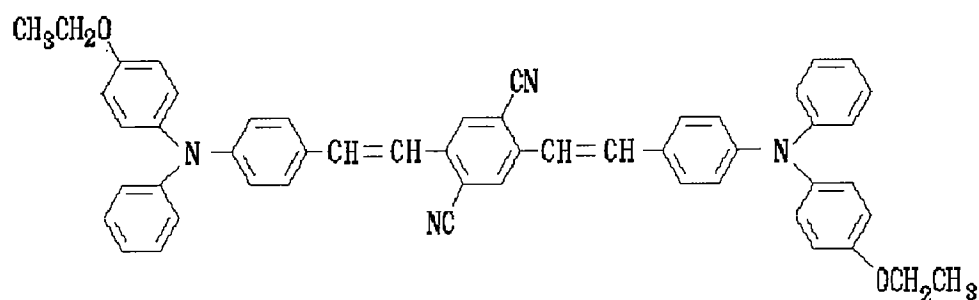
(但し、前記一般式(15')において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項5】 下記構造式(16)－1、(16)－2、(16)－3、(16)－4、(16)－5、(16)－6、(16)－7、(16)－8、(16)－

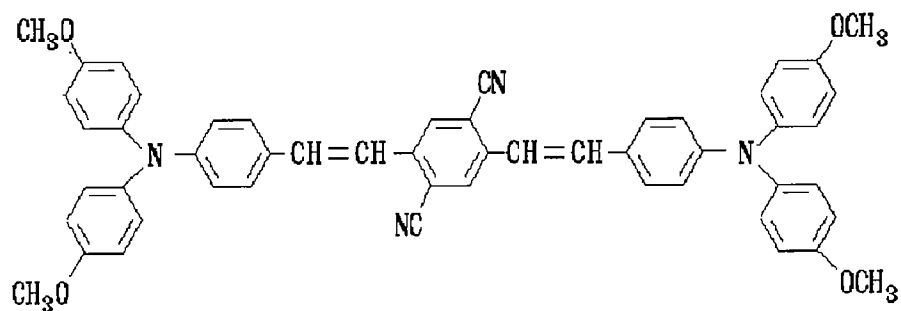
9、(16)－10、(16)－11、(16)－12又は(16)－13で表される、請求項2に記載したビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物。

【化19】

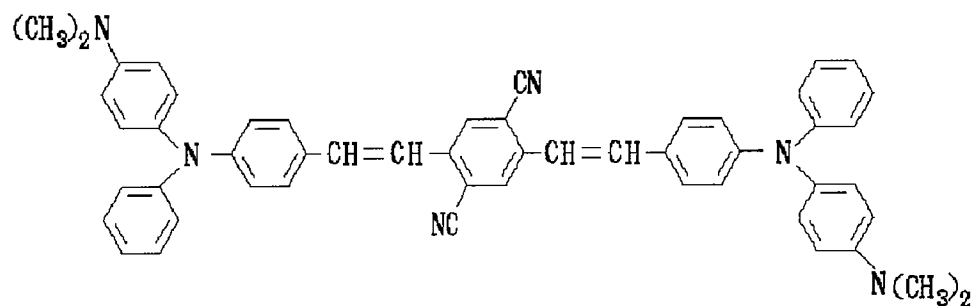
構造式(16)－1 :



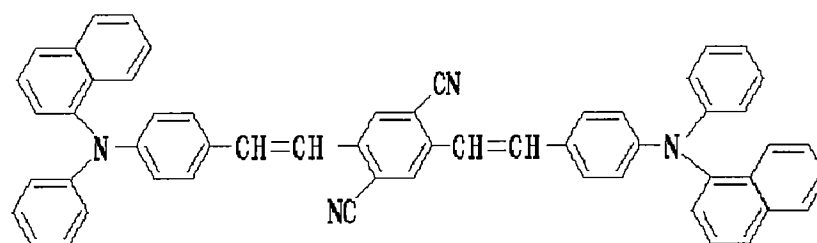
構造式(16)－2 :



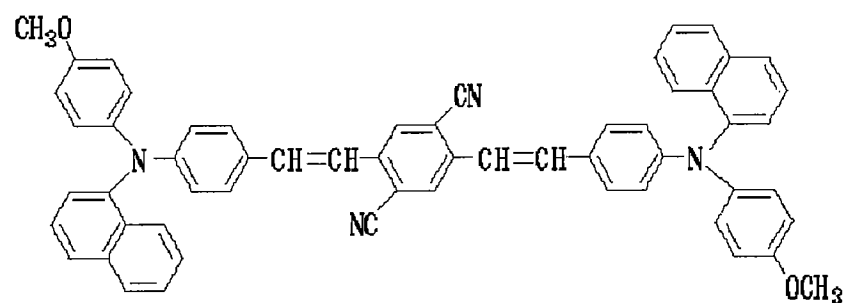
構造式(16)－3 :



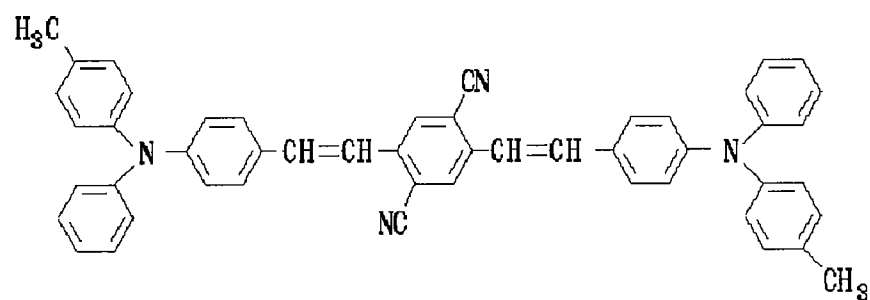
構造式 (16) - 4 :



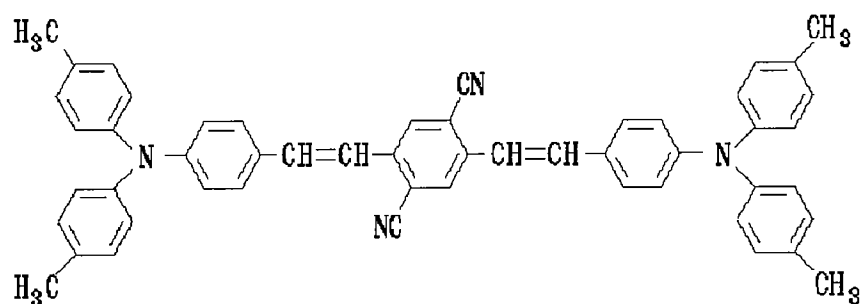
構造式 (16) - 5 :



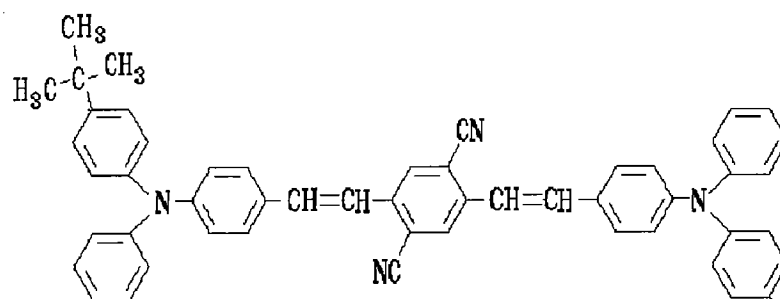
構造式 (16) - 6 :



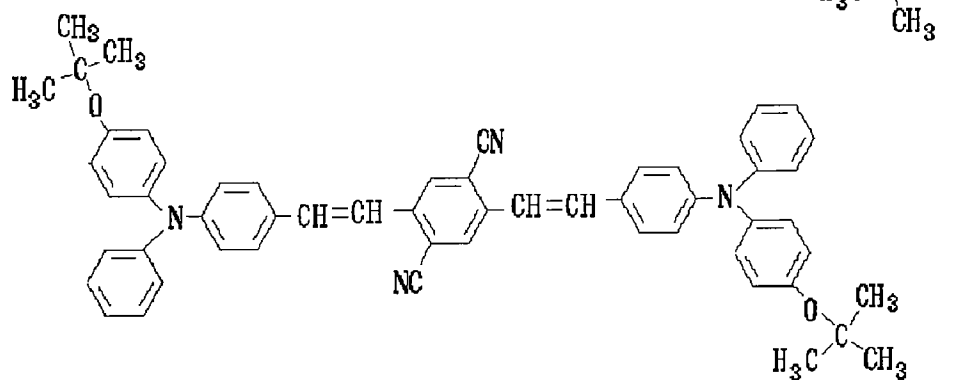
構造式 (16) - 7 :



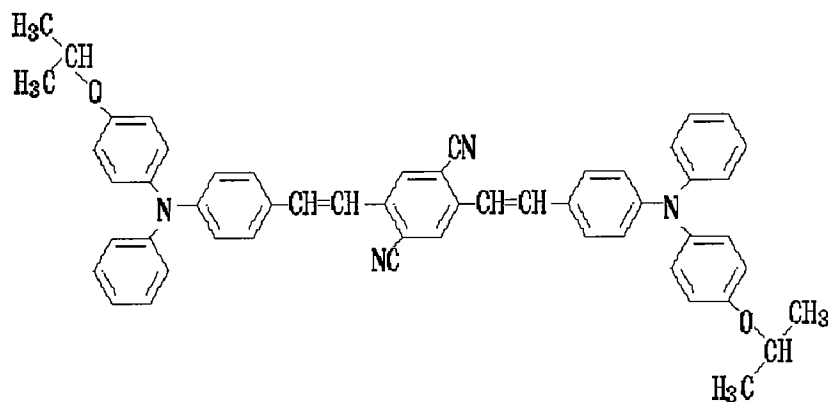
構造式 (16) - 8 :



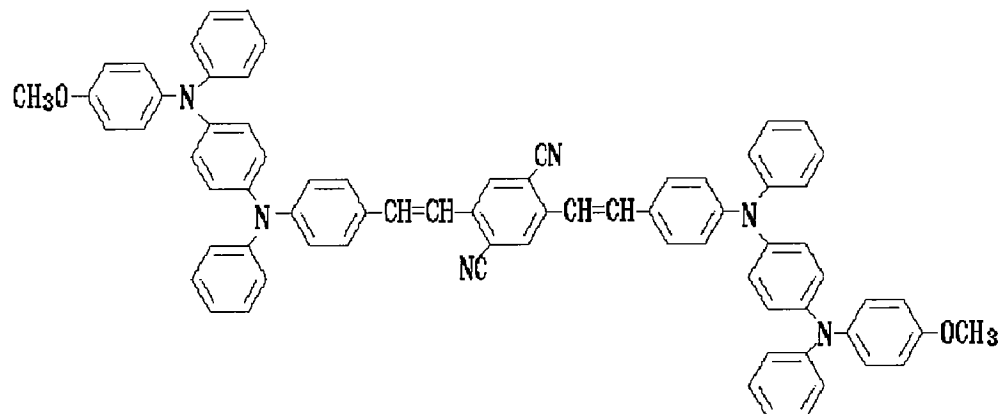
構造式 (16) - 9 :



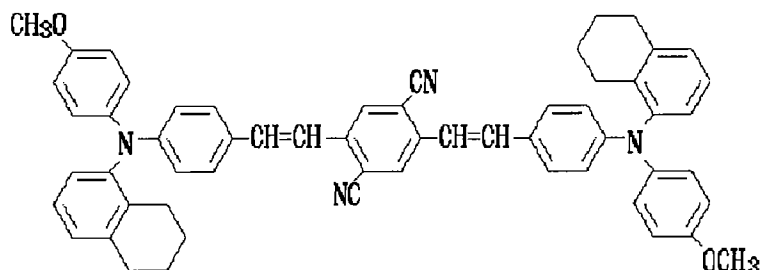
構造式 (16) - 10 :



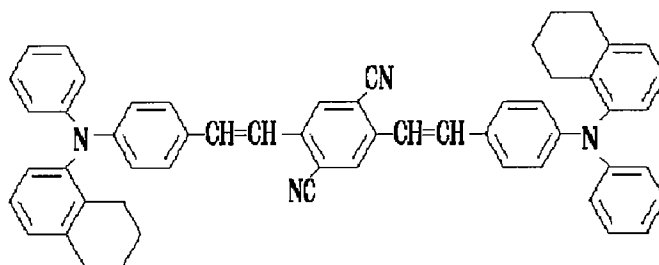
構造式 (16) - 11 :



構造式 (16) - 12 :



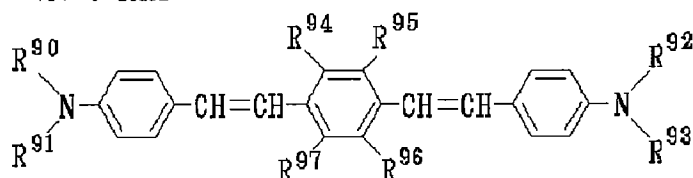
構造式 (16) - 13 :



【請求項6】 下記一般式〔XIX〕で表されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物。

【化20】

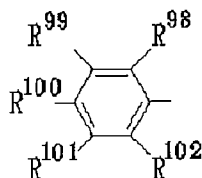
一般式〔XIX〕:



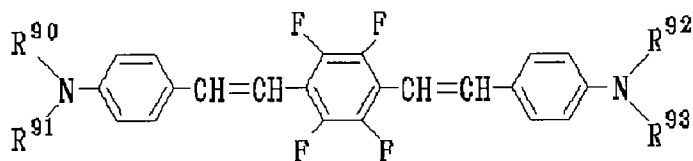
〔但し、前記一般式〔XIX〕において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式（40）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化21】

一般式（40）:



一般式〔XX〕:



〔但し、前記一般式〔XX〕において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は前記したものと同一である。〕

【請求項8】 前記 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は少なくとも一つが下記一般式（41）で表されるアリール基で

（但し、前記一般式（40）において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R^{100} 、 R^{101} 及び R^{102} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。〕

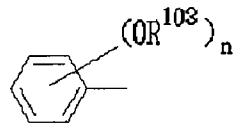
【請求項7】 下記一般式〔XX〕で表される、請求項6に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物。

【化22】

載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物。

【化23】

一般式 (41) :

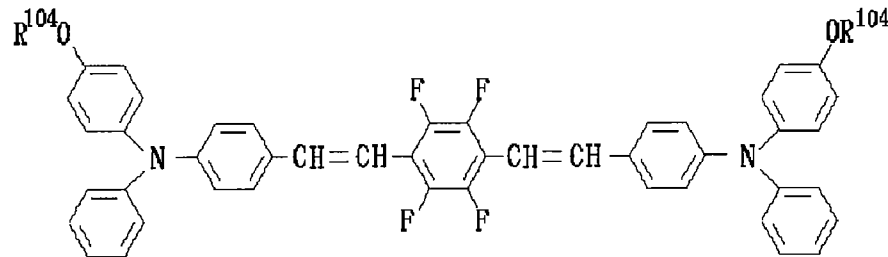


(但し、前記一般式 (41) において、R¹⁰³ は炭素数が1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、nは0～5の整数である。)]

【請求項9】 下記一般式 (42) で表される、請求項8に記載したビス (アミノチリル) ベンゼン化合物。

【化24】

一般式 (42) :



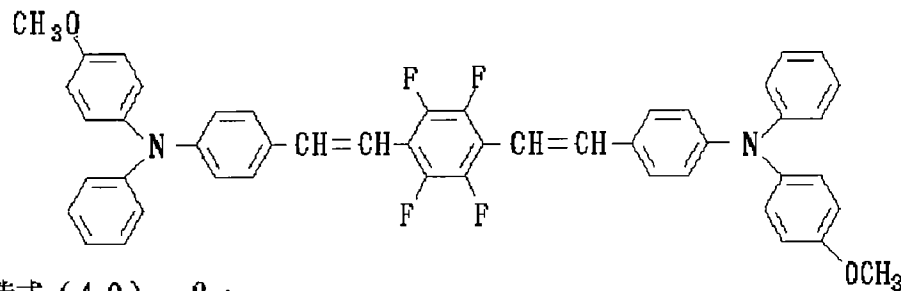
(但し、前記一般式 (42) において、R¹⁰⁴ は炭素数が1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項10】 下記構造式 (40) - 1、(40) - 2、(40) - 3、(40) - 4、(40) - 5、(4

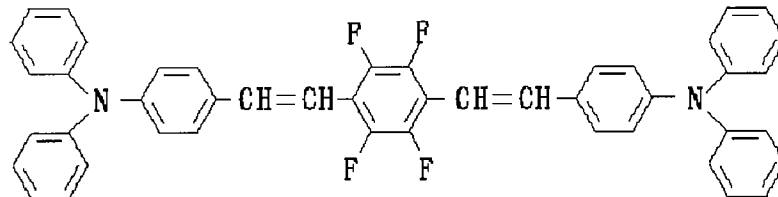
0) - 6又は(40) - 7で示される、請求項7に記載したビス (アミノチリル) ベンゼン化合物。

【化25】

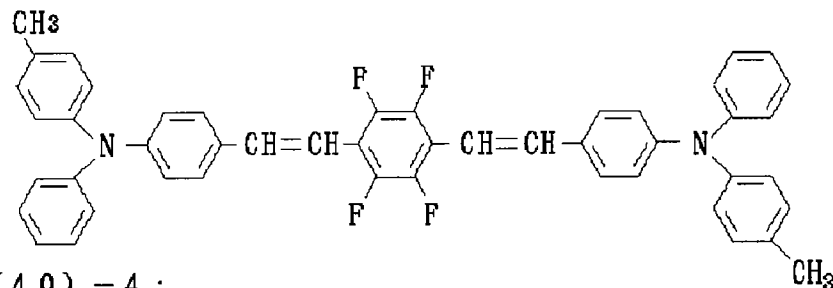
構造式 (40) - 1 :



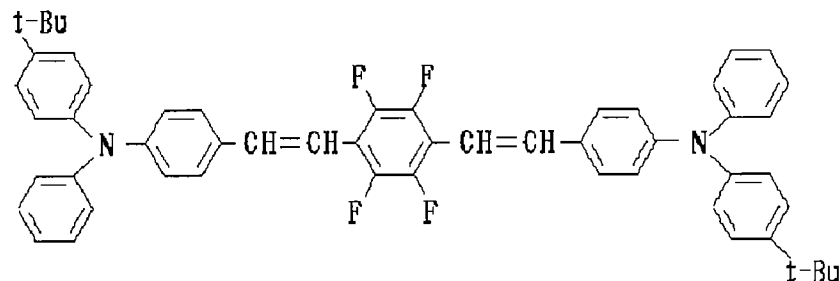
構造式 (40) - 2 :



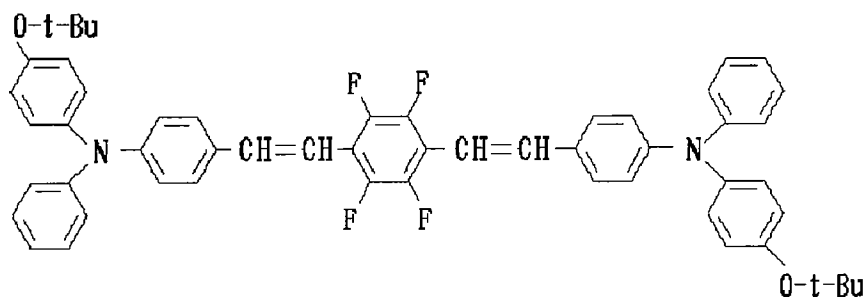
構造式 (40) - 3 :



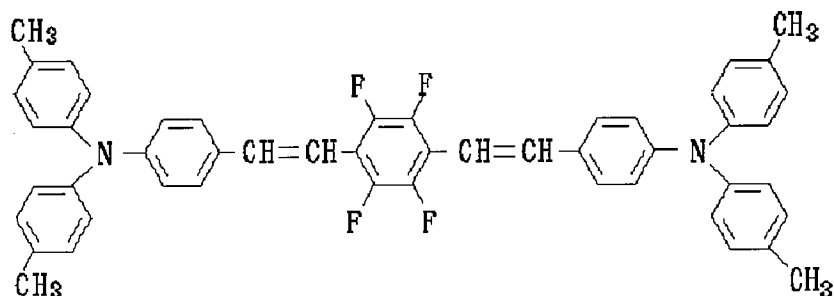
構造式 (40) - 4 :



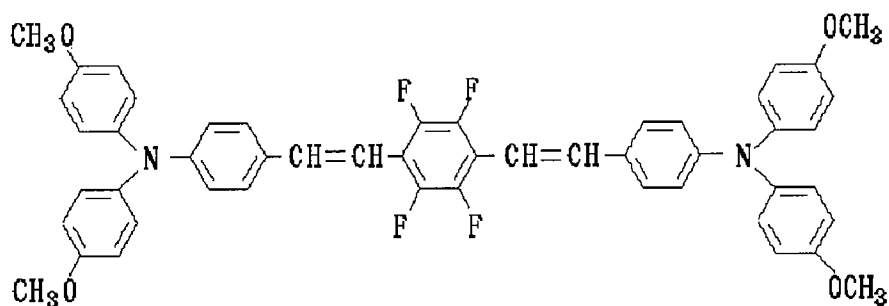
構造式(40)-5:



構造式(40)-6:



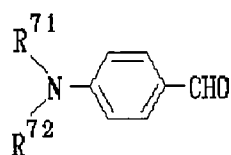
構造式(40)-7:



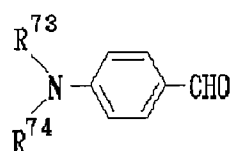
【請求項11】 下記一般式〔V〕又は〔VI〕で表される4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの少なくとも1種と；下記一般式〔VII〕で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式〔VIII〕で表されるジホスホニウム塩と；を縮合させることによって、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物を得る、ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の製造方法。

【化26】

一般式〔V〕:



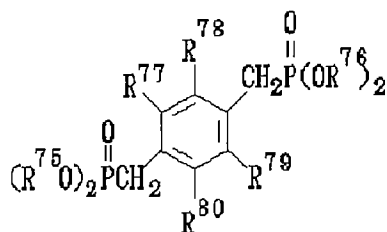
一般式〔VI〕:



びR72はそれぞれ、下記R1、R2、R14、R15、R27、R28、R40又はR41に相当するアリール基であり、R73及びR74はそれぞれ、下記R3、R4、R16、R17、R29、R30、R42又はR43に相当するアリール基である。）

【化27】

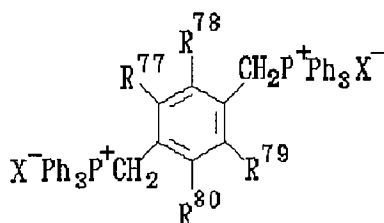
一般式〔VII〕：



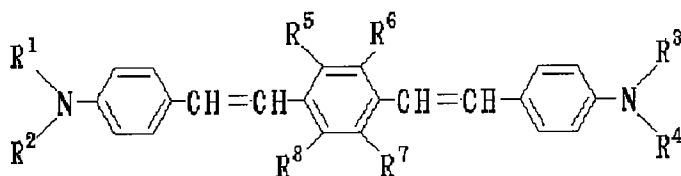
(但し、前記一般式〔VII〕及び〔VIII〕において、R⁷⁵及びR⁷⁶はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、R⁷⁷、R⁷⁸、R⁷⁹及びR⁸⁰はそれぞれ、下記R⁵、R⁶、R⁷、R⁸、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰、R²¹、R³¹、R³²、R³³、R³⁴、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶又はR⁴⁷に相当する基であり、Xはハロゲン原子である。)

【化28】

一般式〔VIII〕：



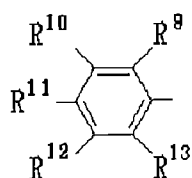
一般式〔I〕：



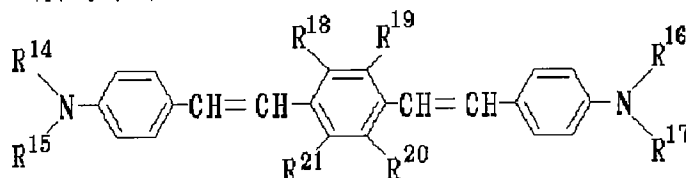
〔但し、前記一般式〔I〕において、R²及びR³は無置換のアリール基であり、R¹及びR⁴は下記一般式(1)で表されるアリール基であり

【化29】

一般式(1)：



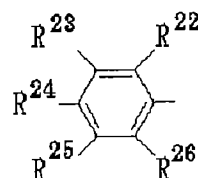
一般式〔II〕：



〔但し、前記一般式〔II〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(2)で表されるアリール基であり

【化31】

一般式(2)：



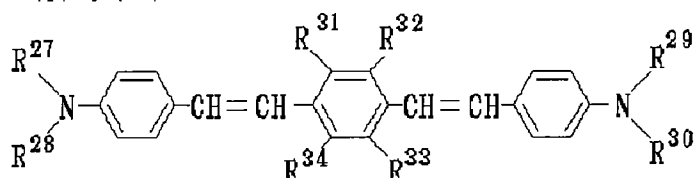
(但し、前記一般式(1)において、R⁹、R¹⁰、R¹¹、R¹²及びR¹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化30】

(但し、前記一般式(2)において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化32】

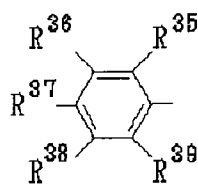
一般式 (III) :



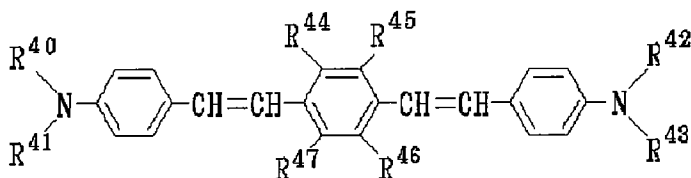
〔但し、前記一般式 (III) において、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{29} 及び R^{30} は、少なくとも1つが下記一般式 (3) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化33】

一般式 (3) :



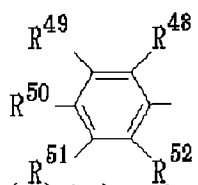
一般式 (IV) :



〔但し、前記一般式 (IV) において、 R^{41} 及び R^{42} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表されるアリール基であり

【化35】

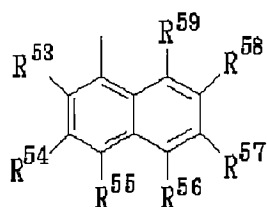
一般式 (4) :



〔但し、前記一般式 (4) において、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 、 R^{51} 及び R^{52} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{40} 及び R^{43} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (5) で表されるアリール基であり

【化36】

一般式 (5) :



〔但し、前記一般式 (3) において、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 及び R^{39} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。)、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 及び R^{34} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化34】

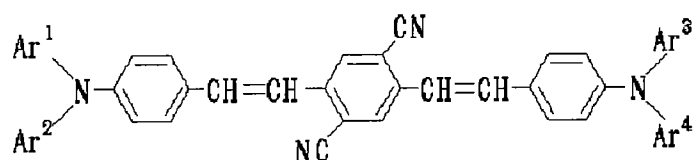
〔但し、前記一般式 (5) において、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【請求項12】 前記縮合をウィットティヒーホーナー (Wittig-Horner) 反応又はウィットティヒ (Wittig) 反応によって行い、前記ジホスホン酸エステル及び/又は前記ジホスホニウム塩を溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドと縮合させる、請求項11に記載したビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の製造方法。

【請求項13】 下記一般式で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物を得るに際し

【化37】

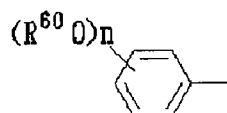
一般式：



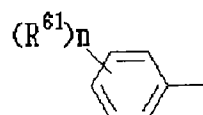
〔但し、前記一般式において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式（６）、（７）、（８）及び（９）で表されるアリール基 から選ばれた基である。

【化３８】

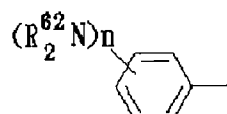
一般式（６）：



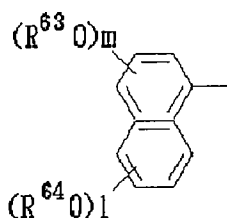
一般式（７）：



一般式（８）：



一般式（９）：



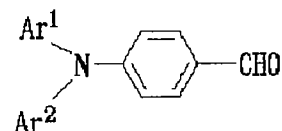
（但し、前記一般式（６）、（７）、（８）及び（９）において、 R^{60} は炭素数２以上の飽和又は不飽和の炭化水素基（或いは、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 のすべてが、一般式（６）のアリール基である場合には、 R^{60} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基）であり、 R^{61} 及び R^{62} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{63} 及び R^{64} は互いに同一の又は異なる炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は０～５の整数であり、 m は０～３の整数であり、 l は０～４の整数である。）〕、

下記一般式（１７）又は（１８）で表される４－（ N ， N －ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドの少なくとも１種と；下記一般式（１９）で表されるジホスホン酸エ

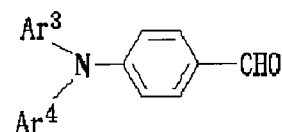
ム塩と；を縮合させる、請求項１１に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【化３９】

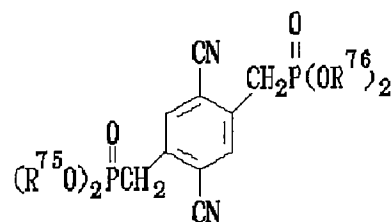
一般式（１７）：



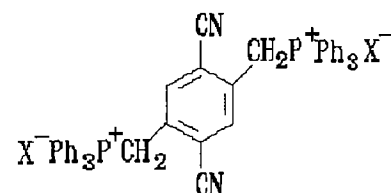
一般式（１８）：



一般式（１９）：



一般式（２０）：



（但し、前記一般式（１７）、（１８）、（１９）及び（２０）において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 、 Ar^4 、 R^{75} 、 R^{76} 及び X は前記したものと同一である。）

【請求項１４】 前記 R^{75} 及び R^{76} を炭素数１～４の飽和炭化水素基とする、請求項１１に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

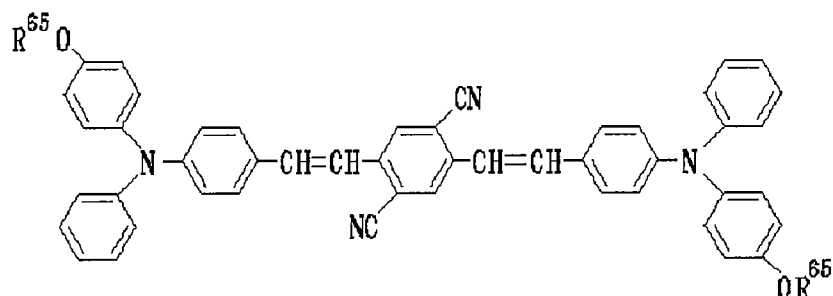
【請求項１５】 前記 R^{60} の炭素数を２～６とし、前記 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{63} 及び R^{64} の炭素数を１～６とする、請求項１３に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【請求項１６】 下記一般式（１０）、（１１）、（１

表されるビス（アミノチリル）ベンゼン化合物を得る、請求項 11 に記載したビス（アミノチリル）ベン

ゼン化合物の製造方法。
【化 40】

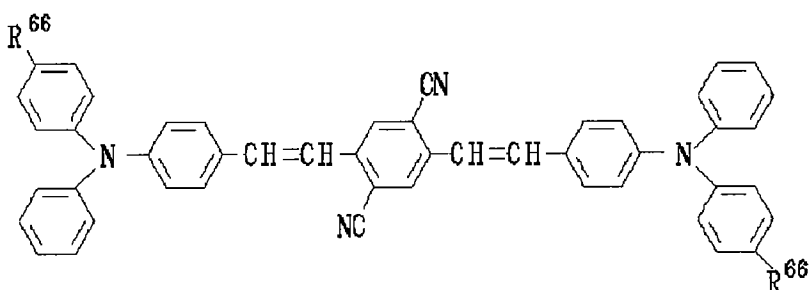
一般式（10）：



（但し、前記一般式（10）において、R⁶⁵は炭素数 2～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化 41】

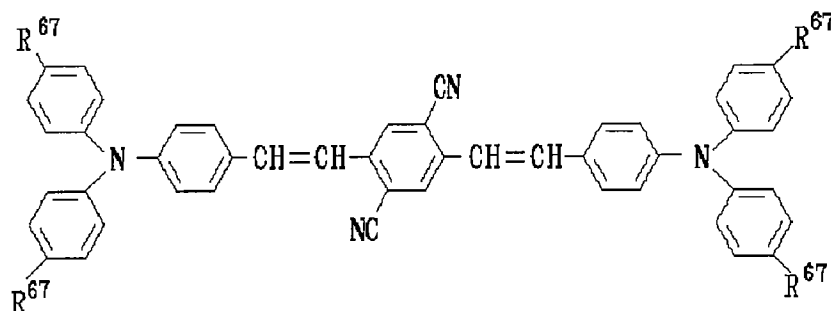
一般式（11）：



（但し、前記一般式（11）において、R⁶⁶は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化 42】

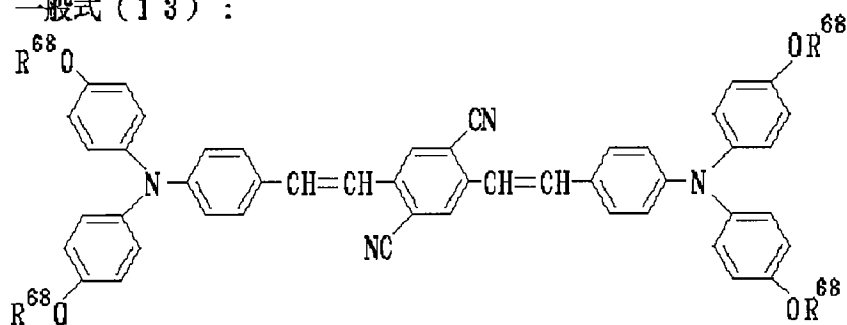
一般式（12）：



（但し、前記一般式（12）において、R⁶⁷は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化 43】

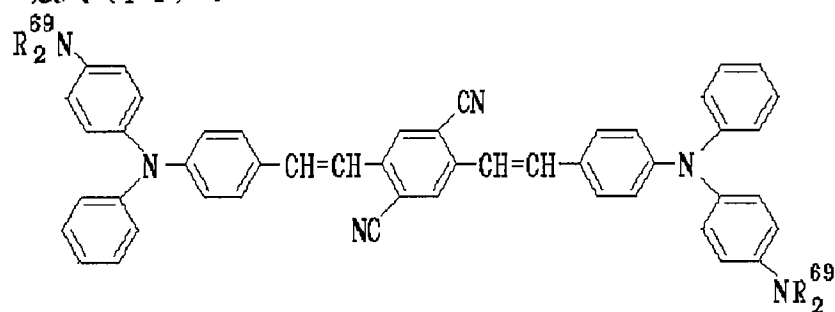
一般式（13）：



（但し、前記一般式（13）において、R⁶⁸は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化 44】

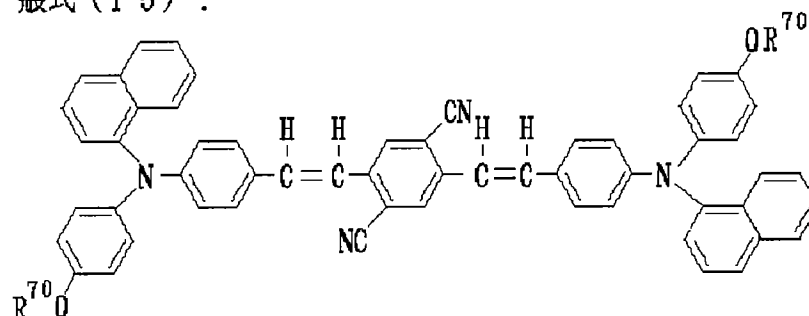
一般式 (14) :



(但し、前記一般式 (14) において、R⁶⁹は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 4 5】

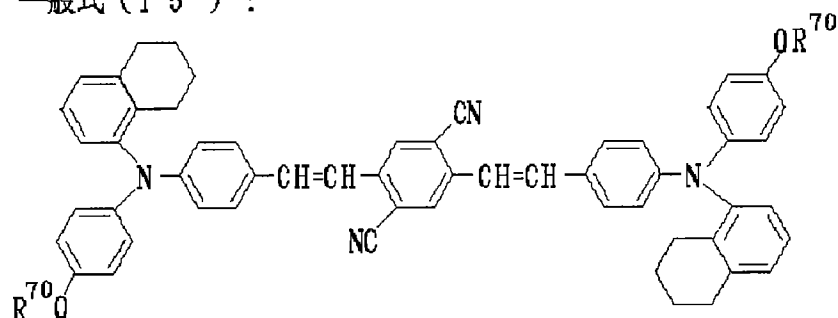
一般式 (15) :



(但し、前記一般式 (15) において、R⁷⁰は炭素数 1
～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 4 6】

一般式 (15') :



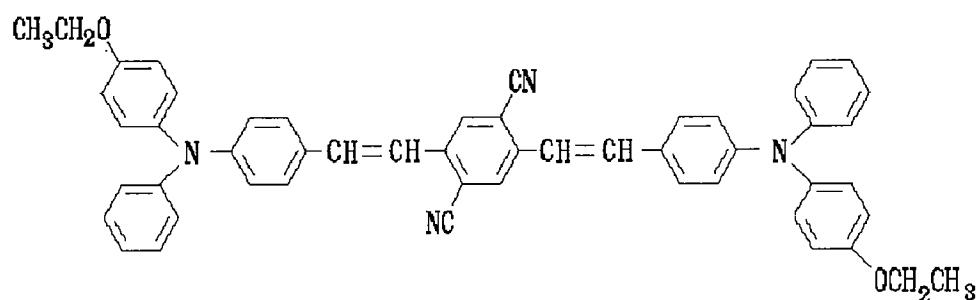
(但し、前記一般式 (15') において、R⁷⁰は炭素数
1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【請求項 17】 下記構造式 (16) - 1、(16) -
2、(16) - 3、(16) - 4、(16) - 5、(1
6) - 6、(16) - 7、(16) - 8、(16) -

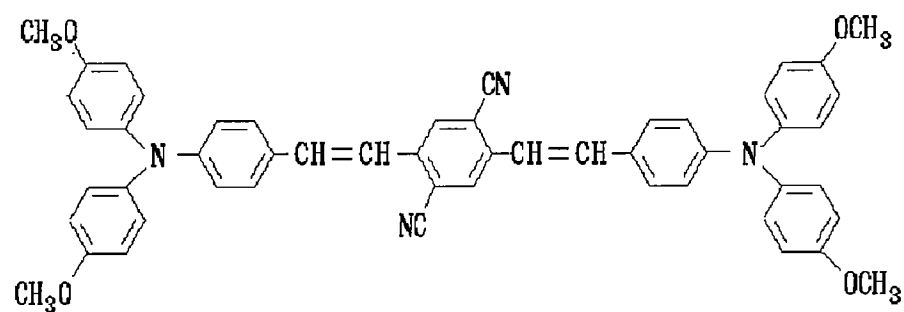
9、(16) - 10、(16) - 11、(16) - 12
又は (16) - 13 で表されるビス (アミノスチリル)
ベンゼン化合物を得る、請求項 11 に記載したビス (ア
ミノスチリル) ベンゼン化合物の製造方法。

【化 4 7】

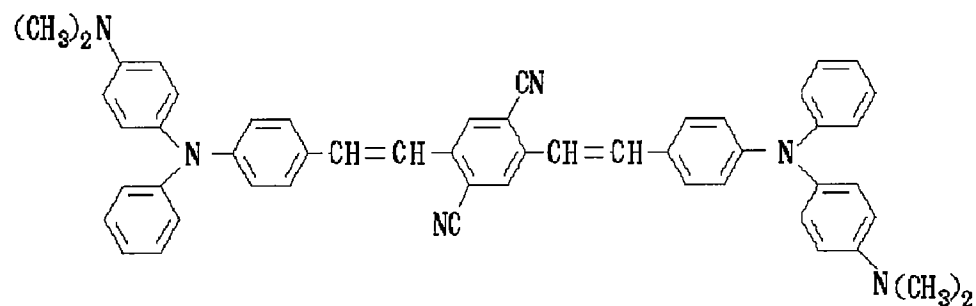
構造式 (16) - 1 :



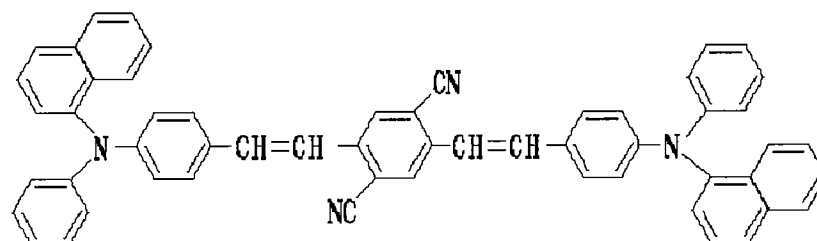
構造式 (16) - 2 :



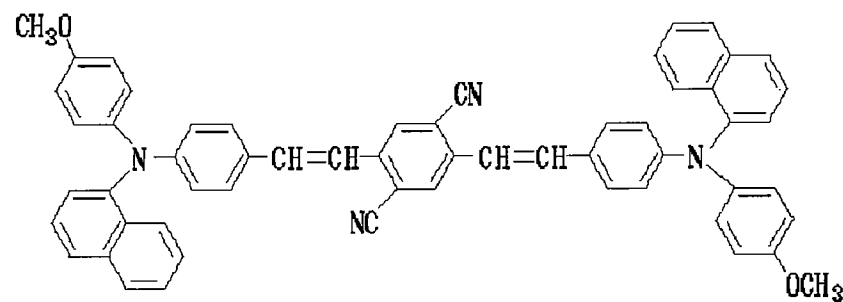
構造式 (16) - 3 :



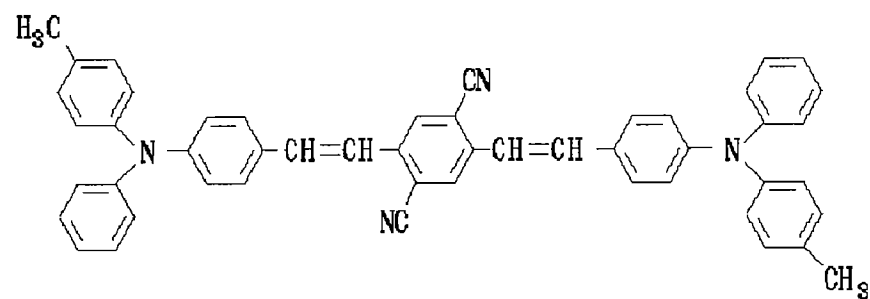
構造式 (16) - 4 :



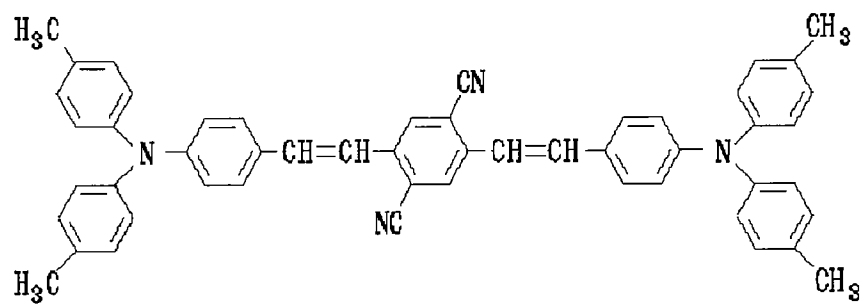
構造式 (16) - 5 :



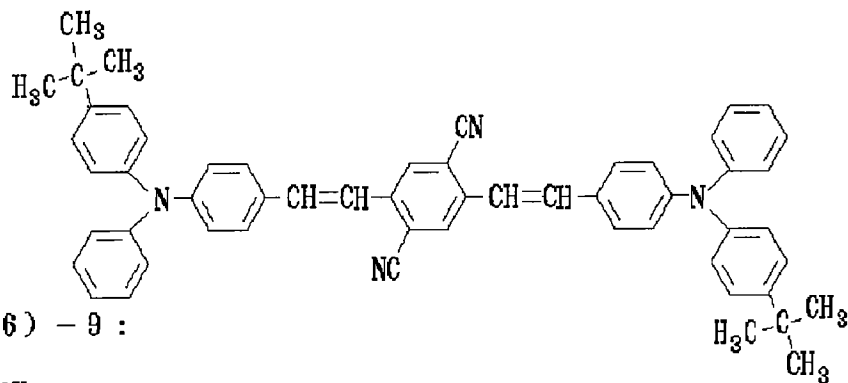
構造式 (16) - 6 :



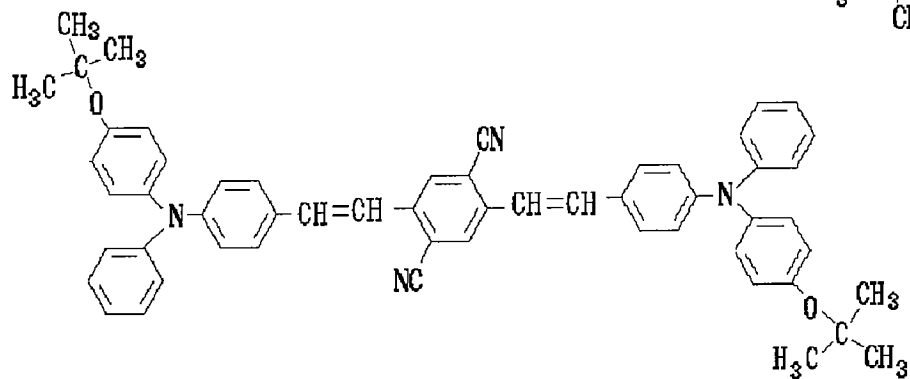
構造式 (16) - 7 :



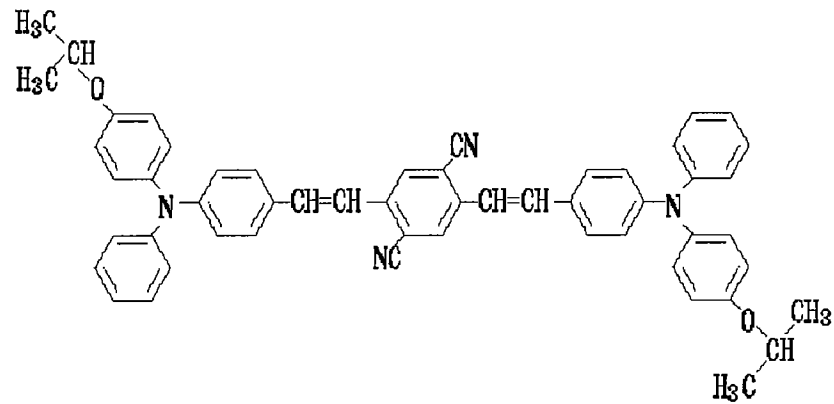
構造式 (16) - 8 :



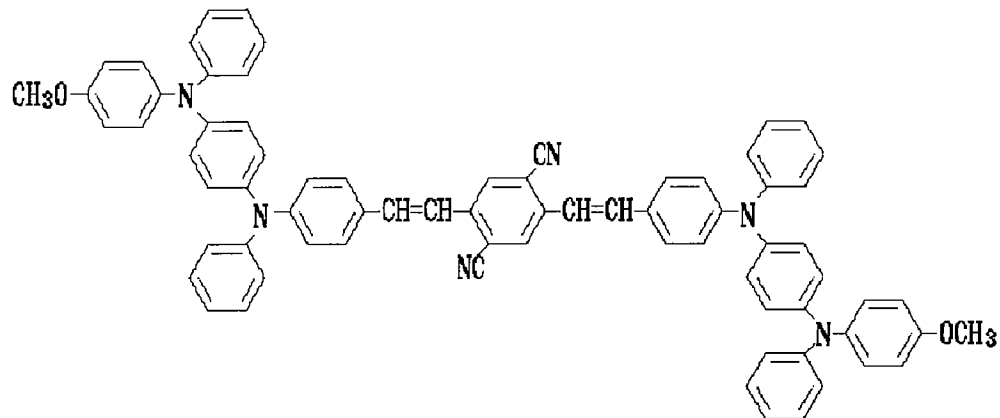
構造式 (16) - 9 :



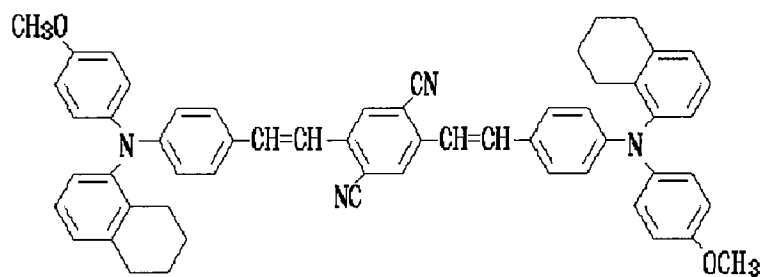
構造式 (16) - 10 :



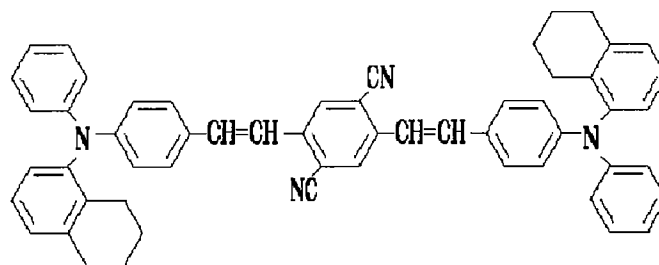
構造式 (16) - 11 :



構造式 (16) - 12 :



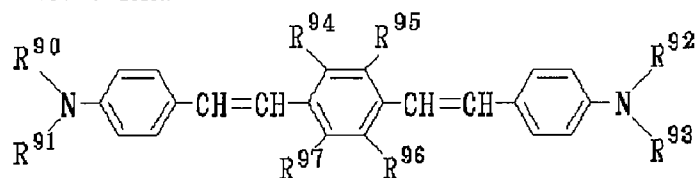
構造式 (16) - 13 :



【請求項18】 下記一般式〔XIX〕で表されるビス
(アミノスチリル) ベンゼン化合物を得るに際し

【化48】

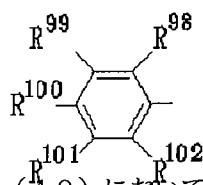
一般式 (XIX) :



〔但し、前記一般式 (XIX) において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式 (40) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化49】

一般式 (40) :

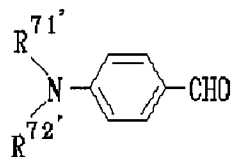


(但し、前記一般式 (40) において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R^{100} 、 R^{101} 及び R^{102} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。〕、

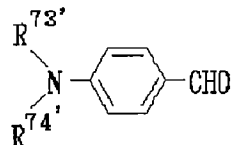
下記一般式 (V') 又は (VI') で表される4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドの少なくとも一種と; 下記一般式 (VII') で表されるジホスホン酸エステル) 又は下記一般式 (VIII') で表されるジホスホニウム塩と; を縮合させる、ビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物の製造方法。

【化50】

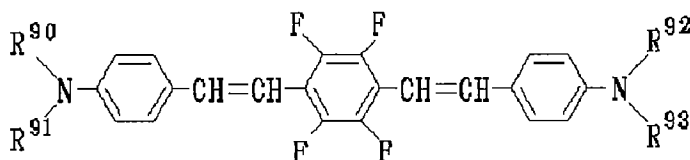
一般式 (V') :



一般式 (VI') :



一般式 (XX) :

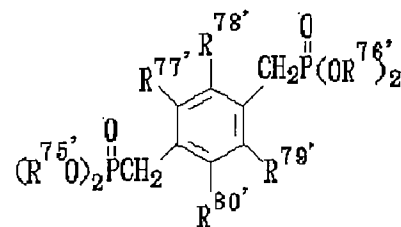


〔但し、前記一般式 (XX) において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92}

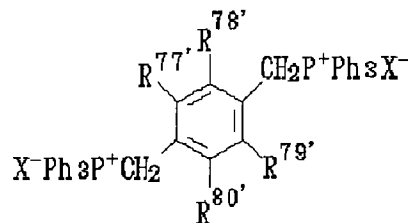
(但し、前記一般式 (V') 及び (VI') において、 $R^{71'}$ 及び $R^{72'}$ はそれぞれ、前記 R^{90} 又は R^{91} に相当するアリール基であり、 $R^{73'}$ 及び $R^{74'}$ はそれぞれ、前記 R^{92} 又は R^{93} に相当するアリール基である。)

【化51】

一般式 (VII') :



一般式 (VIII') :



(但し、前記一般式 (VII') 及び (VIII') において、 $R^{75'}$ 及び $R^{76'}$ はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、 $R^{77'}$ 、 $R^{78'}$ 、 $R^{79'}$ 及び $R^{80'}$ はそれぞれ前記 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 又は R^{97} に相当する基であり、Xはハロゲン原子である。)

【請求項19】 下記一般式 (XX) で表されるビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物を得る、請求項18に記載したビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物の製造方法。

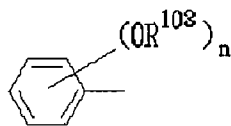
【化52】

【請求項20】 前記 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} を少な

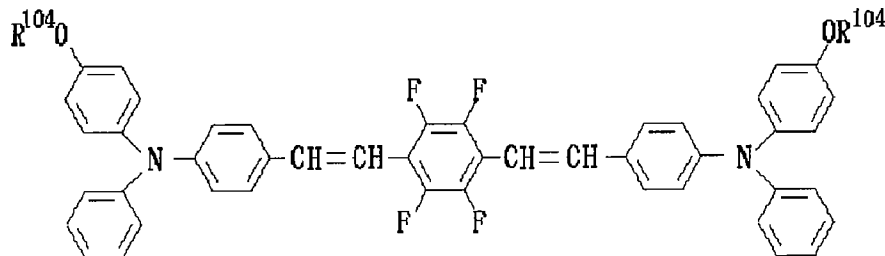
とし、残りを無置換のアリール基とする、請求項 19 に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【化 5 3】

一般式（4 1）：



一般式（4 2）：



（但し、前記一般式（4 2）において、 R^{104} は炭素数が 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【請求項 2 2】 前記縮合をウィッティヒーホーナー（Wittig-Horner）反応又はウィッティヒ（Wittig）反応によって行い、前記ジホスホン酸エステル及び／又は前記ジホスホニウム塩を溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記 4-（N，N-ジアリールアミノ）ベンズアルデヒド

（但し、前記一般式（4 1）において、 R^{103} は炭素数が 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0 ～ 5 の整数である。）。

【請求項 2 1】 下記一般式（4 2）で表されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物を得る、請求項 2 1 に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

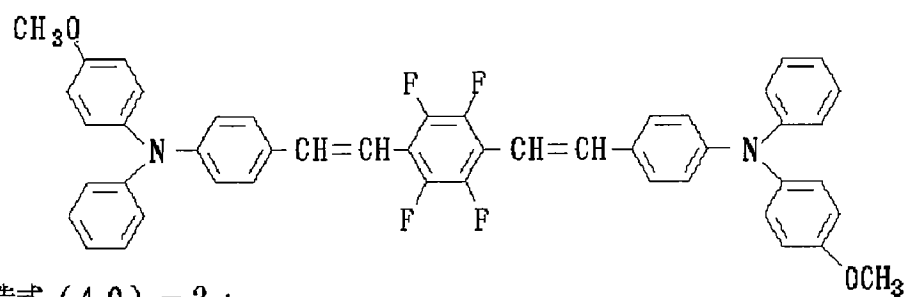
【化 5 4】

と縮合させる、請求項 1 8 に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

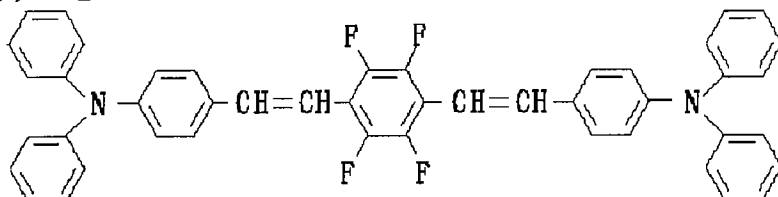
【請求項 2 3】 下記構造式（4 0）- 1、（4 0）- 2、（4 0）- 3、（4 0）- 4、（4 0）- 5、（4 0）- 6 又は（4 0）- 7 で示されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物を得る、請求項 1 9 に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【化 5 5】

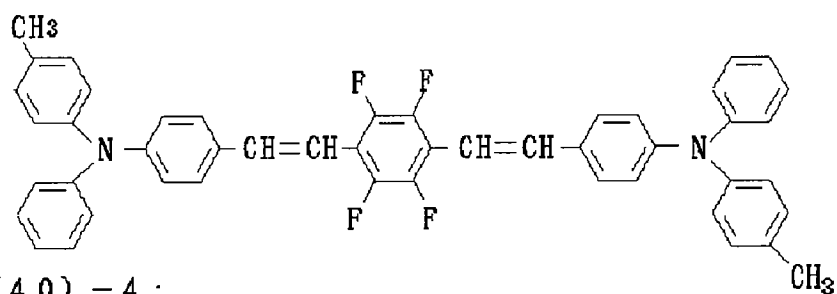
構造式(40)-1:



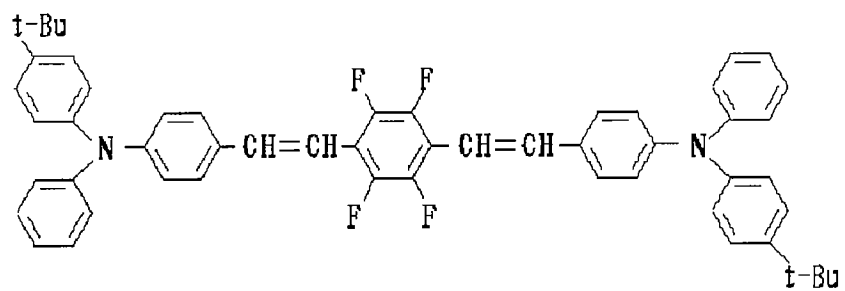
構造式(40)-2:



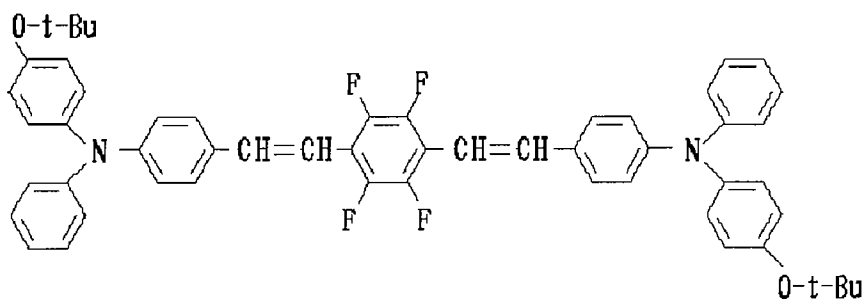
構造式(40)-3:



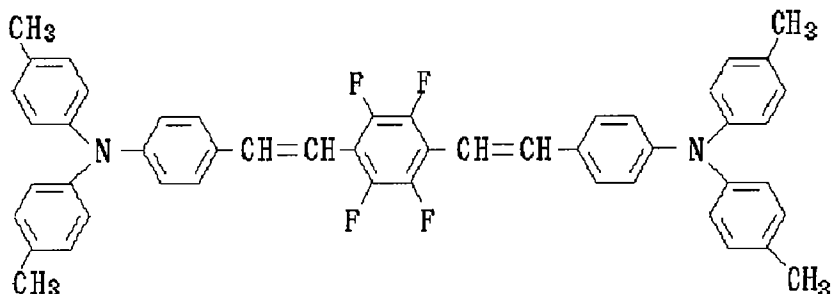
構造式(40)-4:



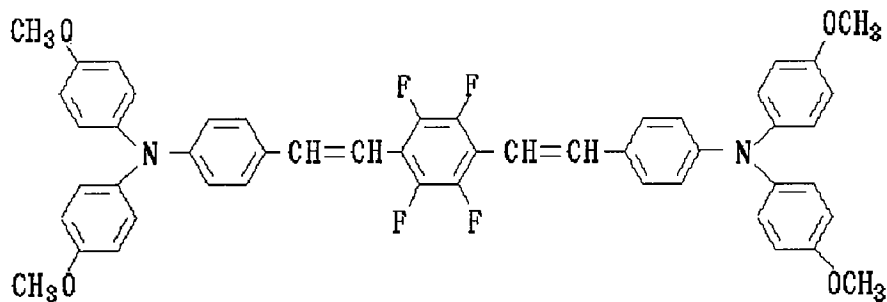
構造式(40)-5:



構造式(40)-6:



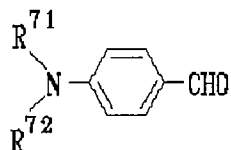
構造式(40)-7:



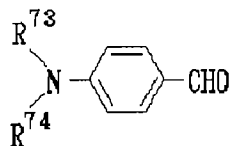
【請求項24】 下記一般式〔V〕又は〔VI〕で表され、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられる4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化56】

一般式〔V〕:



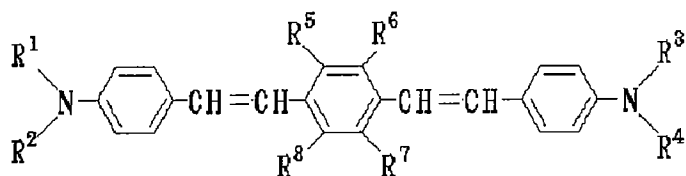
一般式〔VI〕:



(但し、前記一般式〔V〕及び〔VI〕において、 R^{71} 及び R^{72} はそれぞれ、下記 R^1 、 R^2 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{40} 又は R^{41} に相当するアリール基であり、 R^{73} 及び R^{74} はそれぞれ、下記 R^3 、 R^4 、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{42} 又は R^{43} に相当するアリール基である。)

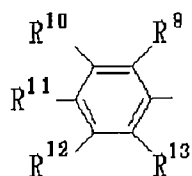
【化57】

一般式〔I〕：

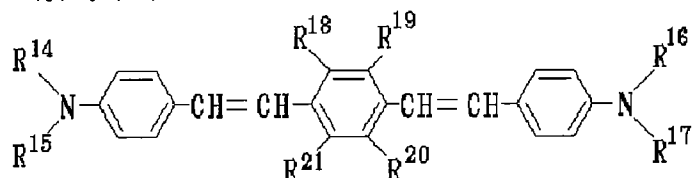


〔但し、前記一般式〔I〕において、R² 及びR³ は無置換のアリール基であり、R¹ 及びR⁴ は下記一般式（1）で表されるアリール基であり
【化58】

一般式（1）：

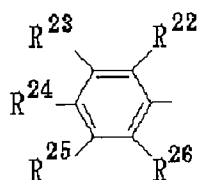


一般式〔II〕：

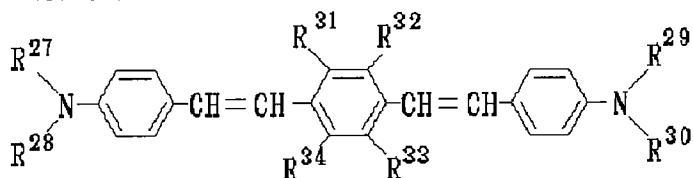


〔但し、前記一般式〔II〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶ 及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（2）で表されるアリール基であり
【化60】

一般式（2）：

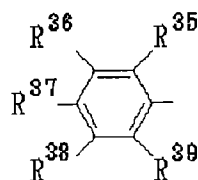


一般式〔III〕：



〔但し、前記一般式〔III〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも1つが下記一般式（3）で表わされるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり
【化62】

一般式（3）：

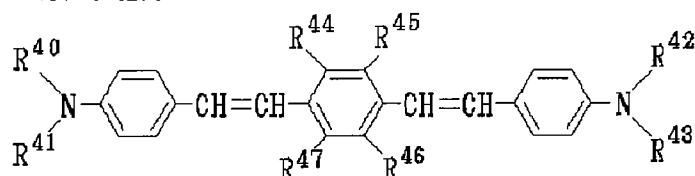


（但し、前記一般式（1）において、R⁹、R¹⁰、R¹¹、R¹²及びR¹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R⁵、R⁶、R⁷ 及びR⁸ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）
【化59】

（但し、前記一般式（2）において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）
【化61】

（但し、前記一般式（3）において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。）、R³¹、R³²、R³³及びR³⁴は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）
【化63】

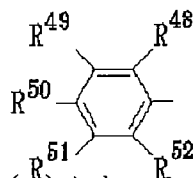
一般式 (IV) :



〔但し、前記一般式 (IV) において、 R^{41} 及び R^{42} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表わされるアリール基であり

【化 6 4】

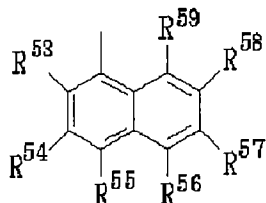
一般式 (4) :



(但し、前記一般式 (4) において、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 、 R^{51} 及び R^{52} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも 1 つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。) 、 R^{40} 及び R^{43} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (5) で表わされるアリール基であり

【化 6 5】

一般式 (5) :

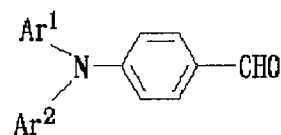


(但し、前記一般式 (5) において、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも 1 つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。) 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

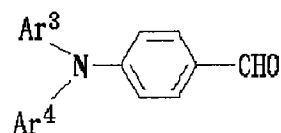
【請求項 2 5】 下記一般式 (1 7) 又は (1 8) で表される、請求項 2 4 に記載した 4 - (N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒド。

【化 6 6】

一般式 (1 7) :



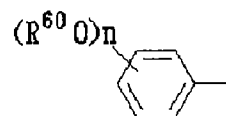
一般式 (1 8) :



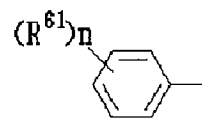
〔但し、前記一般式 (1 7) 及び (1 8) において、 $A r^1$ 、 $A r^2$ 、 $A r^3$ 及び $A r^4$ はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (6) 、(7) 、(8) 及び (9) で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化 6 7】

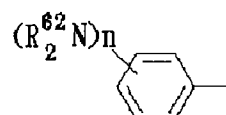
一般式 (6) :



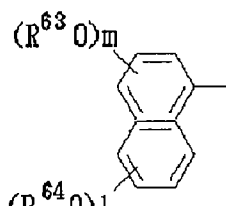
一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



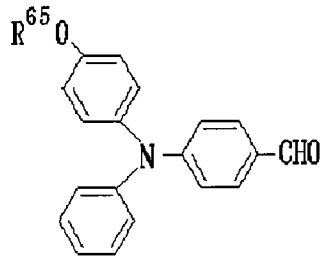
(但し、前記一般式(6)、(7)、(8)及び(9)において、 R^{60} は炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素基(或いは、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 のすべてが一般式(6)のアリール基である場合には、 R^{60} は炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基)であり、 R^{61} 及び R^{62} は炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{63} 及び R^{64} は互いに同一の又は異なる炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は0～5の整数であり、 m は0～3の整数であり、 l は0～4の整数である。))

【請求項26】 前記 R^{60} の炭素数が2～6であり、前記 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{63} 及び R^{64} の炭素数が1～6である、請求項25に記載した4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【請求項27】 下記一般式(21)、(22)、(23)、(24)、(25)、(26)又は(26')で表される、請求項25に記載した4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化68】

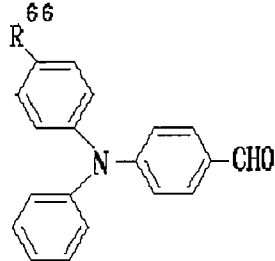
一般式(21)：



(但し、前記一般式(21)において、 R^{65} は炭素数2～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化69】

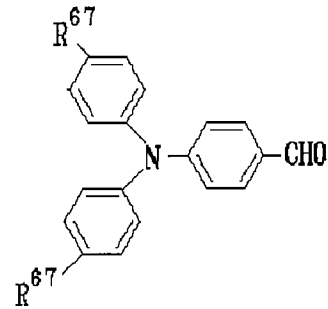
一般式(22)：



(但し、前記一般式(22)において、 R^{66} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化70】

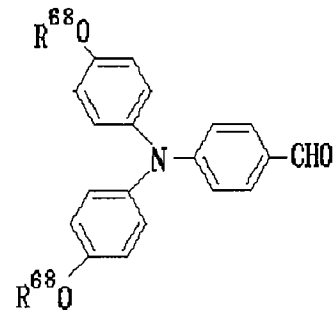
一般式(23)：



(但し、前記一般式(23)において、 R^{67} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化71】

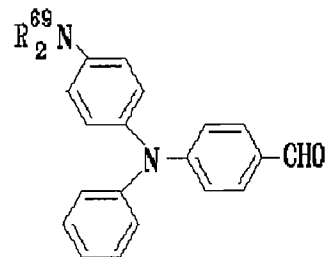
一般式(24)：



(但し、前記一般式(24)において、 R^{68} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化72】

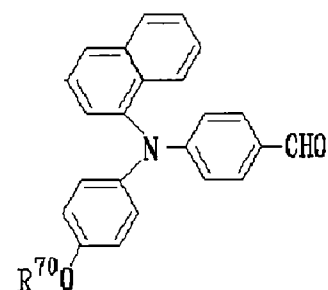
一般式(25)：



(但し、前記一般式(25)において、 R^{69} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化73】

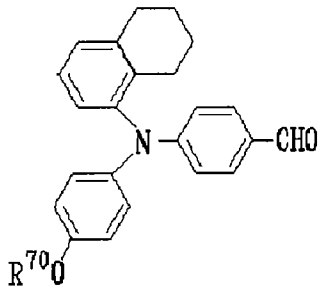
一般式(26)：



(但し、前記一般式(26)において、 R^{70} は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化74】

一般式(26') :

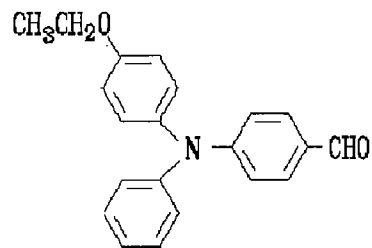


(但し、前記一般式(26')において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

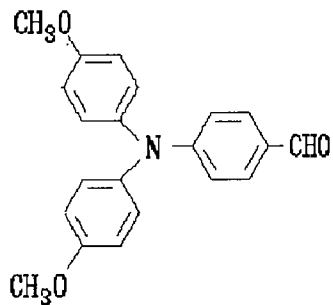
【請求項28】 下記構造式(27)-1、(27)-2、(27)-3、(27)-4、(27)-5、(27)-6、(27)-7、(27)-8、(27)-9、(27)-10、(27)-11、(27)-12、(27)-13、(27)-14又は(27)-15で表される、請求項25に記載した4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化75】

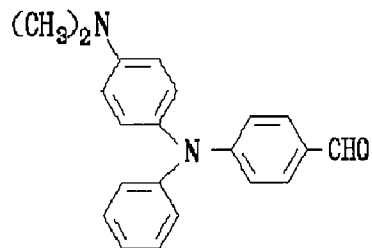
構造式(27)-1 :



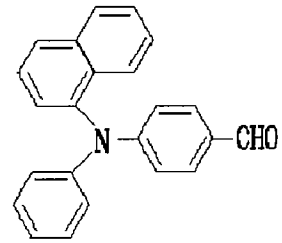
構造式(27)-2 :



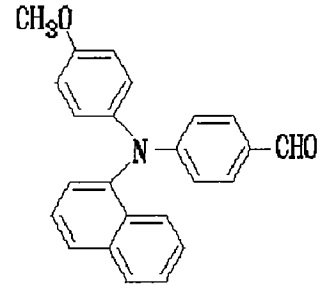
構造式(27)-3 :



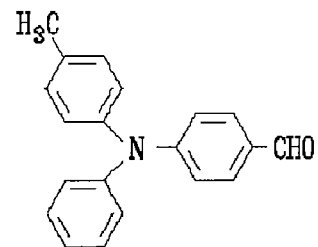
構造式(27)-4 :



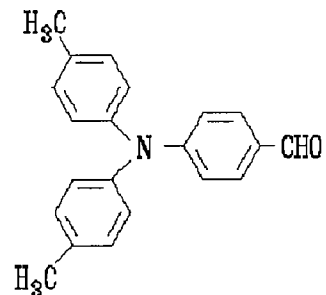
構造式(27)-5 :



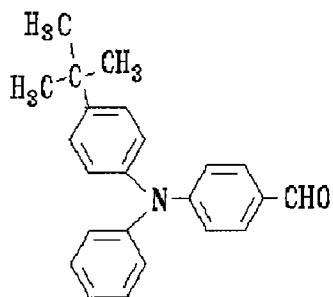
構造式(27)-6 :



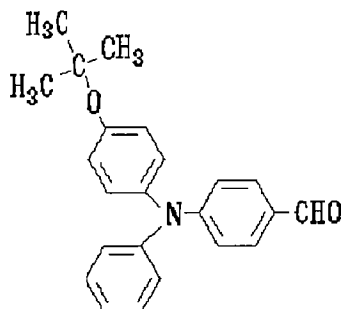
構造式(27)-7 :



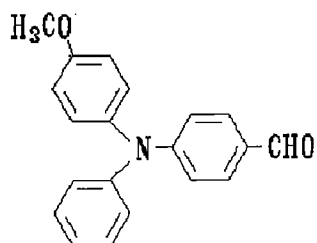
構造式 (27) - 8 :



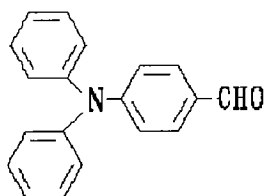
構造式 (27) - 9 :



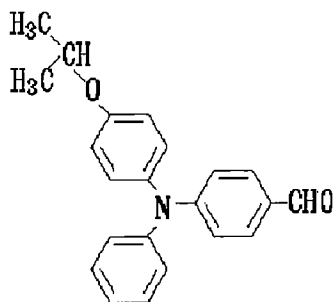
構造式 (27) - 10 :



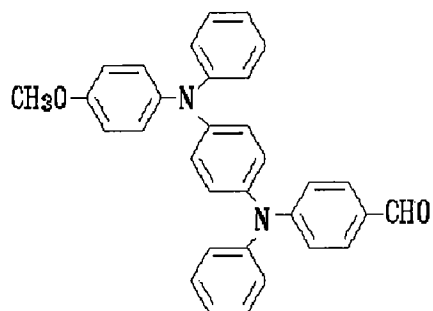
構造式 (27) - 11 :



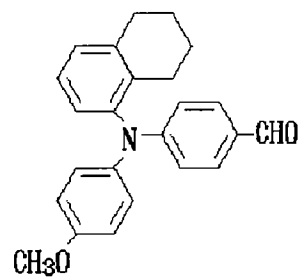
構造式 (27) - 12 :



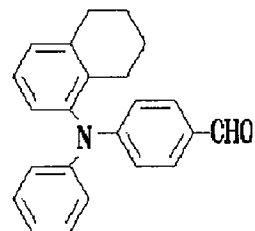
構造式 (27) - 13 :



構造式 (27) - 14 :



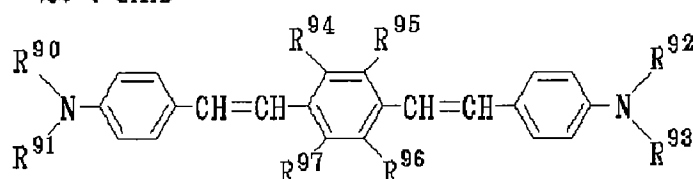
構造式 (27) - 15 :



【請求項29】 下記一般式〔V'〕又は〔VI'〕で表され、下記一般式〔XIX〕で示されるビス(アミノステリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられる4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化76】

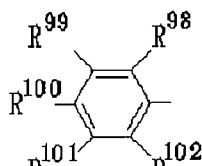
一般式 (XIX) :



〔但し、前記一般式 (XIX) において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式 (40) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化77】

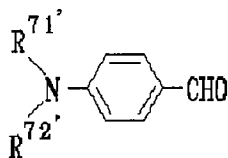
一般式 (40) :



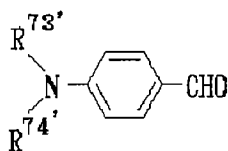
(但し、前記一般式 (40) において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R^{100} 、 R^{101} 及び R^{102} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。〕、

【化78】

一般式 (V') :



一般式 (VI') :

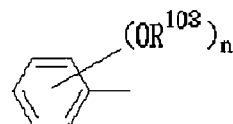


(但し、前記一般式 (V') 及び (VI') において、 $R^{71'}$ 及び $R^{72'}$ はそれぞれ、前記 R^{90} 、又は R^{91} に相当するアリール基であり、 $R^{73'}$ 及び $R^{74'}$ はそれぞれ、前記 R^{92} 又は R^{93} に相当するアリール基である。)

【請求項30】 前記 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は少なくとも一つが下記一般式 (41) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基である、請求項29に記載した4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化79】

一般式 (41) :

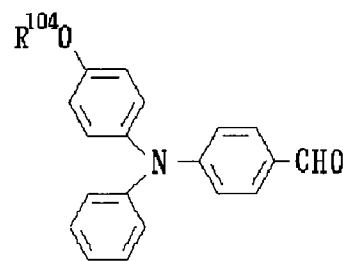


(但し、前記一般式 (41) において、 R^{103} は炭素数が1~4の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は0~5の整数である。)

【請求項31】 下記一般式 (43) で表される、請求項29に記載した4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化80】

一般式 (43) :

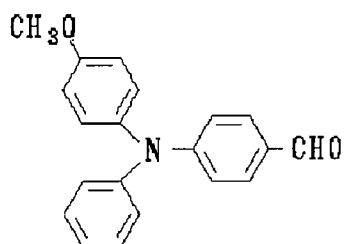


(但し、前記一般式 (43) において、 R^{104} は炭素数が1~4の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

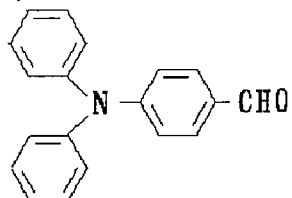
【請求項32】 下記構造式 (41)-1、(41)-2、(41)-3、(41)-4、(41)-5、(41)-6又は(41)-7で表される、請求項29に記載した4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化81】

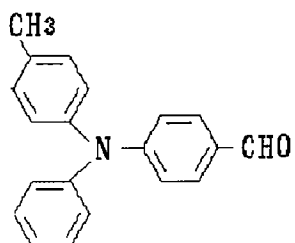
構造式 (41) - 1 :



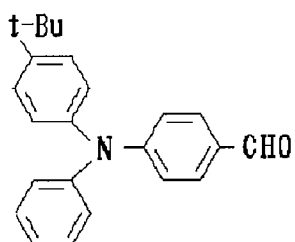
構造式 (41) - 2 :



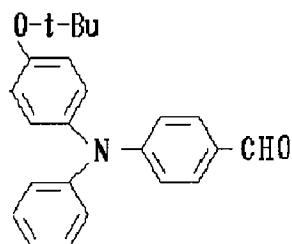
構造式 (41) - 3 :



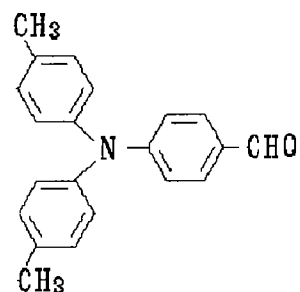
構造式 (41) - 4 :



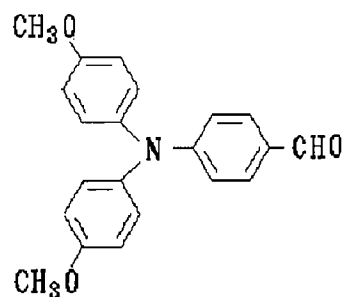
構造式 (41) - 5 :



構造式 (41) - 6 :



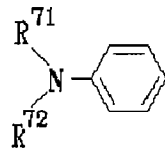
構造式 (41) - 7 :



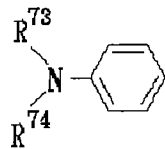
【請求項33】 下記一般式〔IX〕又は〔X〕、或いは下記一般式〔IX'〕又は〔X'〕で表されるトリアリールアミンをジメチルホルムアミドとオキシ塩化リンとの付加体によってホルミル化し、これによって、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕、或いは下記一般式〔XIX〕で表されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の合成中間体として用いられかつ下記一般式〔V〕又は〔VI〕、或いは下記一般式〔V'〕又は〔V I'〕で表される4-（N，N-ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドを得る、4-（N，N-ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドの製造方法。

【化82】

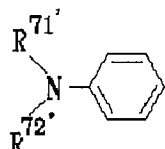
一般式〔IX〕：



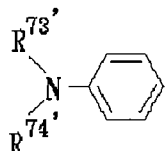
一般式〔X〕：



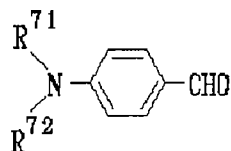
一般式〔IX'〕：



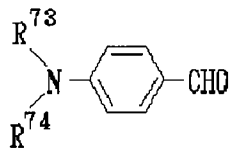
一般式〔X'〕：



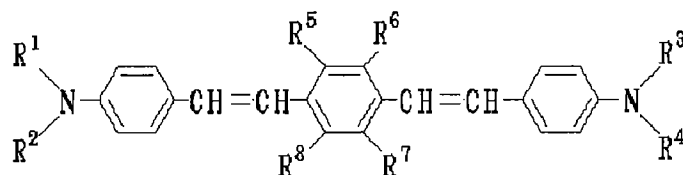
一般式〔V〕：



一般式〔VI〕：



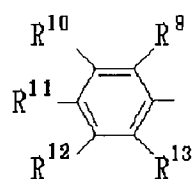
一般式〔I〕：



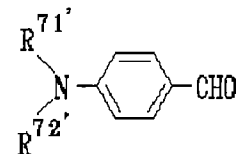
〔但し、前記一般式〔I〕において、 R^2 及び R^3 は無置換のアリール基であり、 R^1 及び R^4 は下記一般式（1）で表されるアリール基であり

【化84】

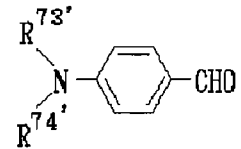
一般式（1）：



一般式〔V'〕：



一般式〔VI'〕：



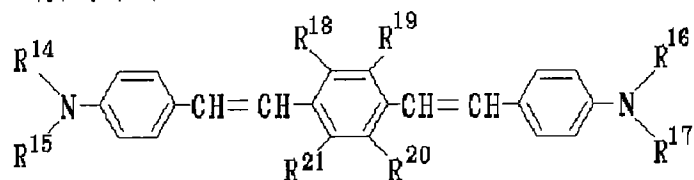
（但し、前記一般式〔IX〕及び〔X〕、〔IX'〕及び〔X'〕、〔V〕及び〔VI〕、〔V'〕及び〔VI'〕において、 R^{71} 及び R^{72} はそれぞれ、下記 R^1 、 R^2 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{40} 又は R^{41} に相当するアリール基であり、 $R^{71'}$ 及び $R^{72'}$ はそれぞれ、下記 R^{90} 又は R^{91} に相当するアリール基であり、 R^{73} 及び R^{74} はそれぞれ、下記 R^3 、 R^4 、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{42} 又は R^{43} に相当するアリール基であり、 $R^{73'}$ 及び $R^{74'}$ はそれぞれ、下記 R^{92} 又は R^{93} に相当するアリール基である。）

【化83】

（但し、前記一般式（1）において、 R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 及び R^{13} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、 R^5 、 R^6 、 R^7 及び R^8 は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）

【化85】

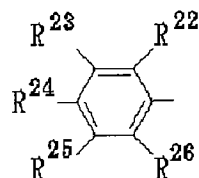
一般式 (II) :



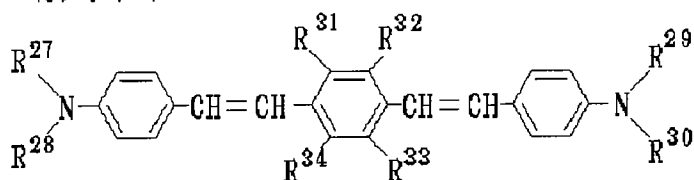
〔但し、前記一般式 (II) において、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 及び R^{17} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (2) で表されるアリール基であり

【化 8 6】

一般式 (2) :



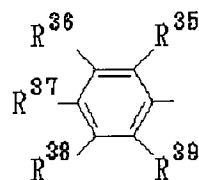
一般式 (III) :



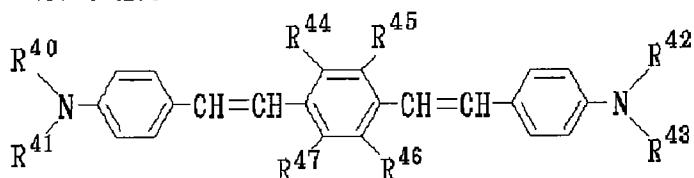
〔但し、前記一般式 (III) において、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{29} 及び R^{30} は、少なくとも 1 つが下記一般式 (3) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化 8 8】

一般式 (3) :



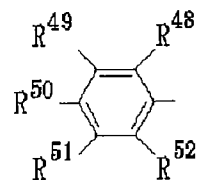
一般式 (IV) :



〔但し、前記一般式 (IV) において、 R^{41} 及び R^{42} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表されるアリール基であり

【化 9 0】

一般式 (4) :



〔但し、前記一般式 (2) において、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 及び R^{26} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{18} 、 R^{19} 、 R^{20} 及び R^{21} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化 8 7】

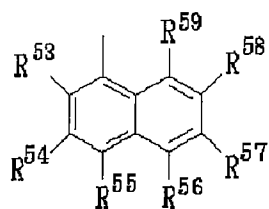
〔但し、前記一般式 (3) において、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 及び R^{39} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。)、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 及び R^{34} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化 8 9】

R^{50} 、 R^{51} 及び R^{52} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも 1 つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{40} 及び R^{43} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (5) で表されるアリール基であり

【化 9 1】

一般式 (5) :



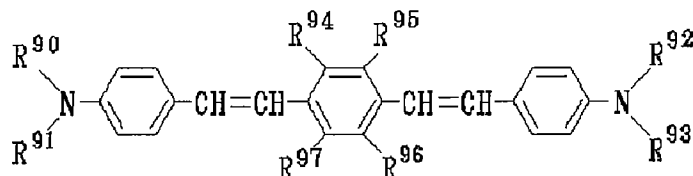
(但し、前記一般式 (5) において、R⁵³、R⁵⁴、

R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸及びR⁵⁹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、

R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶及びR⁴⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化92】

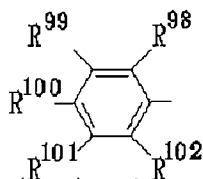
一般式 (XIX) :



〔但し、前記一般式 (XIX) において、R⁹⁰、R⁹¹、R⁹²及びR⁹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式 (40) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化93】

一般式 (40) :

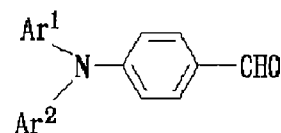


(但し、前記一般式 (40) において、R⁹⁸、R⁹⁹、R¹⁰⁰、R¹⁰¹及びR¹⁰²は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁹⁴、R⁹⁵、R⁹⁶及びR⁹⁷は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。]

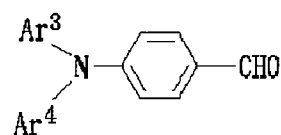
【請求項34】 下記一般式 (17) 又は (18) で表される4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドを得る、請求項33に記載した4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの製造方法。

【化94】

一般式 (17) :



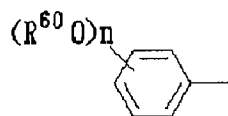
一般式 (18) :



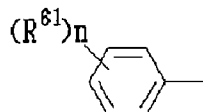
〔但し、前記一般式 (17) 及び (18) において、Ar¹、Ar²、Ar³及びAr⁴はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式 (6)、(7)、(8) 及び (9) で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化95】

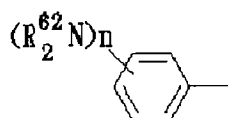
一般式（６）：



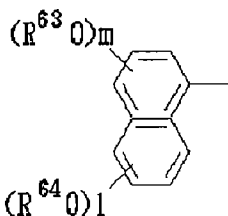
一般式（７）：



一般式（８）：



一般式（９）：



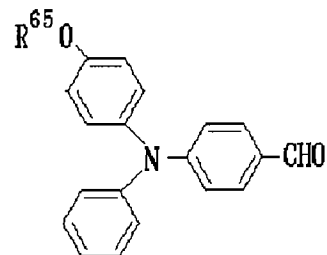
（但し、前記一般式（６）、（７）、（８）及び（９）において、 R^{60} は炭素数２以上の飽和又は不飽和の炭化水素基（或いは、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 のすべてが一般式（６）のアリール基である場合には、 R^{60} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基）であり、 R^{61} 及び R^{62} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{63} 及び R^{64} は互いに同一の又は異なる炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は０～５の整数であり、 m は０～３の整数であり、 l は０～４の整数である。）

【請求項３５】 前記 R^{60} の炭素数を２～６とし、前記 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{63} 及び R^{64} の炭素数を１～６とする、請求項３４に記載した４－（ N ， N －ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドの製造方法。

【請求項３６】 下記一般式（２１）、（２２）、（２３）、（２４）、（２５）、（２６）、又は（２６′）で表される４－（ N ， N －ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドを得る、請求項３４に記載した４－（ N ， N －ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドの製造方法。

【化９６】

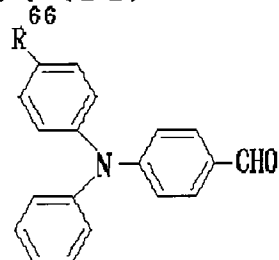
一般式（２１）：



（但し、前記一般式（２１）において、 R^{65} は炭素数２～６の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化９７】

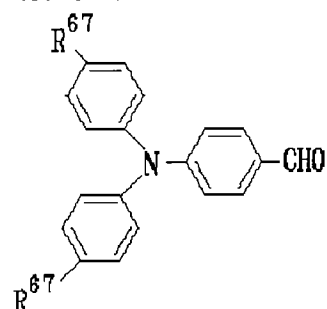
一般式（２２）：



（但し、前記一般式（２２）において、 R^{66} は炭素数１～６の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化９８】

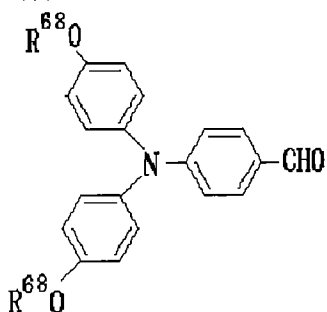
一般式（２３）：



（但し、前記一般式（２３）において、 R^{67} は炭素数１～６の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化９９】

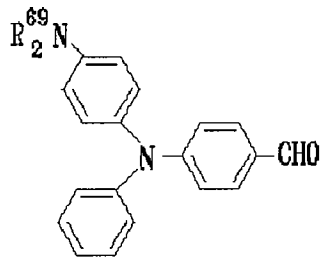
一般式（２４）：



（但し、前記一般式（２４）において、 R^{68} は炭素数１～６の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化１００】

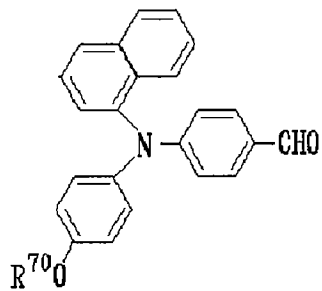
一般式 (25) :



(但し、前記一般式 (25) において、 R^{69} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 101】

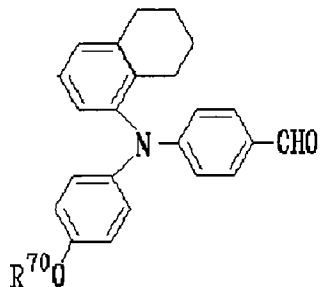
一般式 (26) :



(但し、前記一般式 (26) において、 R^{70} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 102】

一般式 (26') :

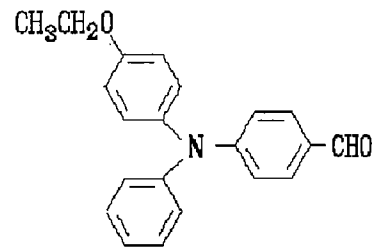


(但し、前記一般式 (26') において、 R^{70} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和炭化水素基である。)

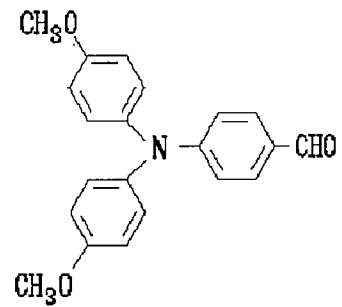
【請求項 37】 下記構造式 (27) - 1、(27) - 2、(27) - 3、(27) - 4、(27) - 5、(27) - 6、(27) - 7、(27) - 8、(27) - 9、(27) - 10、(27) - 11、(27) - 12、(27) - 13、(27) - 14 又は (27) - 15 で表される 4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドを得る、請求項 34 に記載した 4-(N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒドの製造方法。

【化 103】

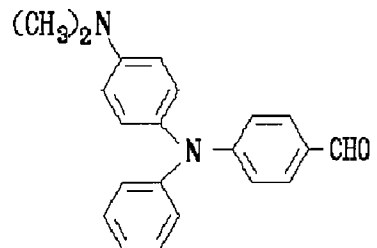
構造式 (27) - 1 :



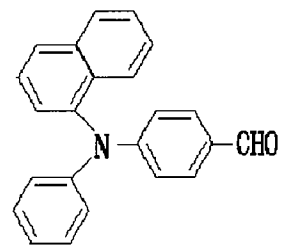
構造式 (27) - 2 :



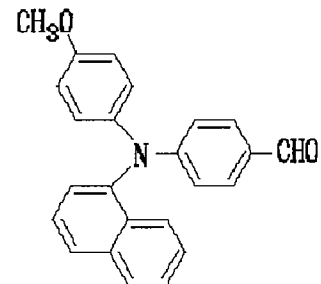
構造式 (27) - 3 :



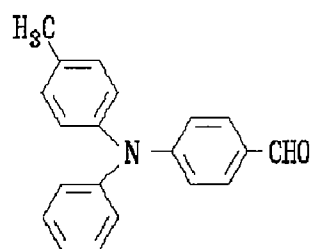
構造式 (27) - 4 :



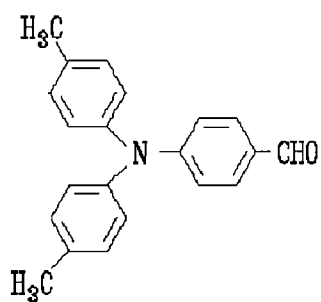
構造式 (27) - 5 :



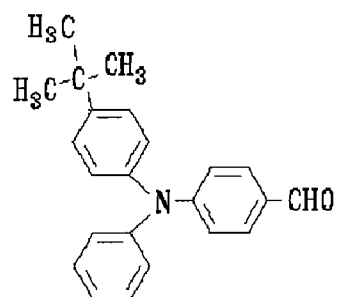
構造式 (27) - 6 :



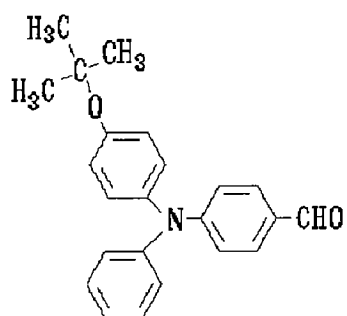
構造式 (27) - 7 :



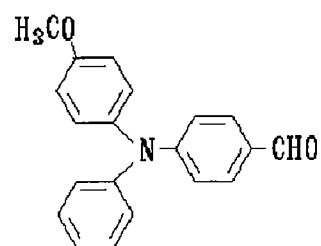
構造式 (27) - 8 :



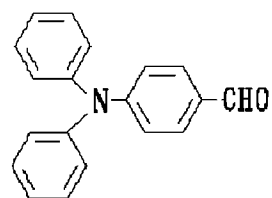
構造式 (27) - 9 :



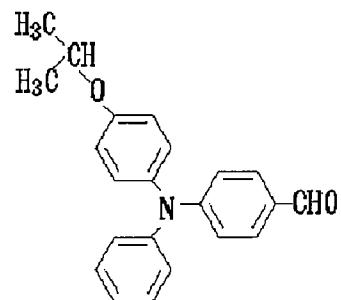
構造式 (27) - 10 :



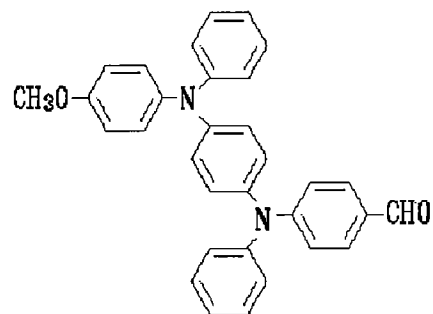
構造式 (27) - 11 :



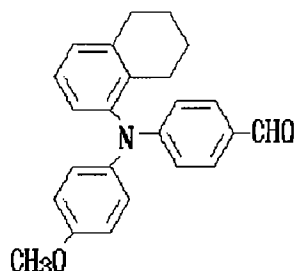
構造式 (27) - 12 :



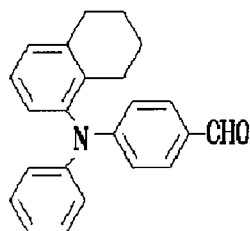
構造式 (27) - 13 :



構造式(27)-14:



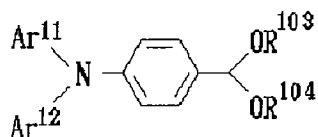
構造式(27)-15:



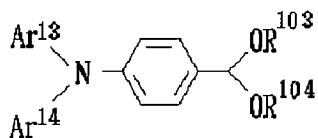
【請求項38】 下記一般式(44)、(45)又は(46)で表されるアセタール化合物。

【化104】

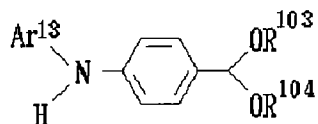
一般式(44):



一般式(45):



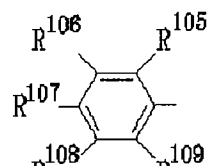
一般式(46):



〔但し、前記一般式(44)、(45)及び(46)において、Ar¹¹、Ar¹²、Ar¹³及びAr¹⁴は、互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(47)で表されるアリール基であり、

【化105】

一般式(47):

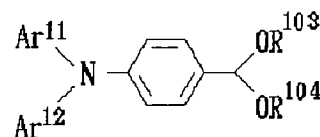


(但し、前記一般式(47)において、R¹⁰⁵、R¹⁰⁶、R¹⁰⁷、R¹⁰⁸及びR¹⁰⁹は、互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、炭化水素基、炭化水素オキシ基又は炭化水素アミノ基から選ばれた基である。)、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R¹⁰³とR¹⁰⁴が炭素鎖によってつながれた構造をとってもよい。]

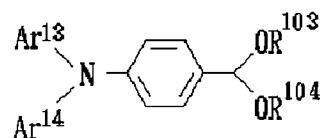
【請求項39】 下記一般式(44)、(45)又は(46)で表されるアセタール化合物を得るに際し

【化106】

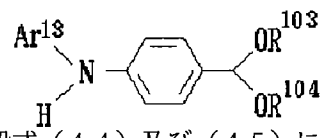
一般式(44):



一般式(45):



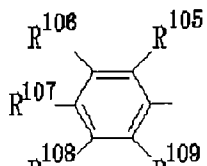
一般式(46):



〔但し、前記一般式(44)及び(45)において、Ar¹¹、Ar¹²、Ar¹³及びAr¹⁴は、互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(47)で表されるアリール基であり

【化107】

一般式(47):



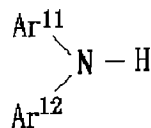
(但し、前記一般式(47)において、R¹⁰⁵、R¹⁰⁶、R¹⁰⁷、R¹⁰⁸及びR¹⁰⁹は、互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、炭化水素基、炭化水素オキシ基又は炭化水素アミノ基から選ばれた基である。)、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は飽和又は不飽和の炭化水素

構造をとってもよい。〕、

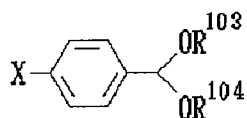
前記一般式(44)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(48)で表されるアミン化合物と下記一般式(49)で表されるアセタール化合物とをカップリングさせ

【化108】

一般式(48)：



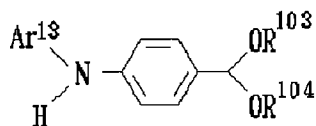
一般式(49)：



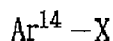
(但し、前記一般式(48)及び(49)において、 Ar^{11} 、 Ar^{12} 、 R^{103} 及び R^{104} は前記したものと同一であり、Xはハロゲン原子である。)、

前記一般式(45)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(49')で表されるアセタール化合物と下記一般式(50)で表されるアリール化合物とをカップリングさせ
【化109】

一般式(49')：



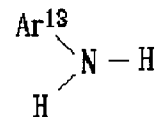
一般式(50)：



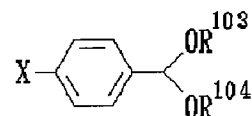
(但し、前記一般式(49')及び(50)において、 Ar^{13} 、 Ar^{14} 、 R^{103} 及び R^{104} は前記したものと同一であり、Xはハロゲン原子である。)、
前記一般式(46)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(51)で表されるアミン化合物と下記一般式(52)で表されるアセタール化合物とをカップリングさせる、アセタール化合物の製造方法。

【化110】

一般式(51)：



一般式(52)：



(但し、前記一般式(51)及び(52)において、 Ar^{13} 、 R^{103} 及び R^{104} は前記したものと同一であり、Xはハロゲン原子である。)

【請求項40】 前記カップリング時に用いる前記触媒として、下記のPd(O)-ホスフィン錯体が活性種として働く、請求項39に記載したアセタール化合物の製造方法。

Pd(O)-ホスフィン錯体

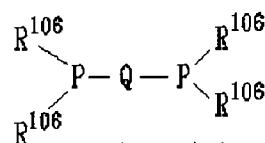
(但し、Pd(O)はPd(O)、Pd(I)、Pd(II)の試薬として添加されてもよく、ホスフィンは下記一般式(53)又は(54)で表される3級ホスフィンである。

【化111】

一般式(53)：

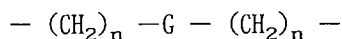


一般式(54)：

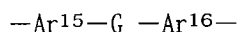


(但し、前記一般式(53)及び(54)において、 R^{105} 及び R^{106} は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、Qは炭化水素基、又は下記一般式(55)又は(56)で表されるような橋かけ構造をとってもよい。

一般式(55)：



一般式(56)：



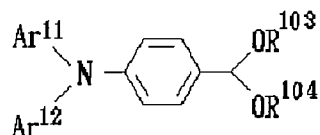
(但し、前記一般式(55)及び(56)において、Gは酸素原子、硫黄原子、アミノ基、炭化水素基又は金属原子であり、 Ar^{15} 及び Ar^{16} は置換基を有してもよいアリール基である。)) }

【請求項41】 下記一般式(44)、(45)又は(46)で表されるアセタール化合物を、ケトン溶媒

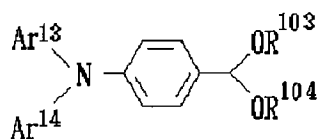
ることにより、下記一般式（５７）、（５８）又は（５９）で表される４－（Ｎ，Ｎ－ジアリールアミノ）ベンズアルデヒド化合物を得る、４－（Ｎ，Ｎ－ジアリールアミノ）ベンズアルデヒド化合物の製造方法。

【化１１２】

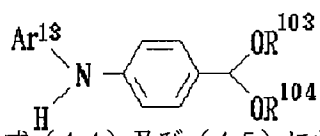
一般式（４４）：



一般式（４５）：



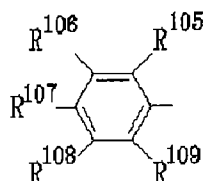
一般式（４６）：



〔但し、前記一般式（４４）及び（４５）において、 $A r^{11}$ 、 $A r^{12}$ 、 $A r^{13}$ 及び $A r^{14}$ は、互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（４７）で表されるアリール基であり、

【化１１３】

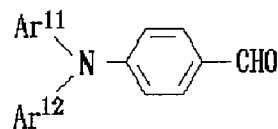
一般式（４７）：



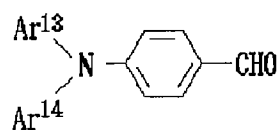
〔但し、前記一般式（４７）において、 R^{105} 、 R^{106} 、 R^{107} 、 R^{108} 及び R^{109} は、互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、炭化水素基、炭化水素オキシ基又は炭化水素アミノ基から選ばれた基である。）、 R^{103} 及び R^{104} は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{103} と R^{104} とが炭素鎖によってつながれた構造をとってもよい。〕

【化１１４】

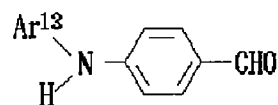
一般式（５７）：



一般式（５８）：



一般式（５９）：

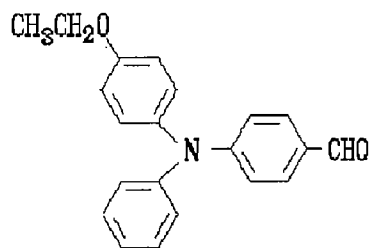


（但し、前記一般式（５７）、（５８）及び（５９）において、 $A r^{11}$ 、 $A r^{12}$ 、 $A r^{13}$ 及び $A r^{14}$ は前記したものと同一である。）

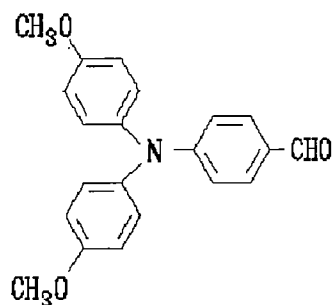
【請求項４２】 下記構造式（２７）－１、（２７）－２、（２７）－３、（２７）－４、（２７）－５、（２７）－６、（２７）－７、（２７）－８、（２７）－９、（２７）－１０、（２７）－１１、（２７）－１２、（２７）－１３、（２７）－１４又は（２７）－１５で表される４－（Ｎ，Ｎ－ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドを得る、請求項４１に記載した４－（Ｎ，Ｎ－ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドの製造方法。

【化１１５】

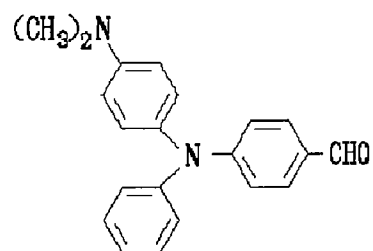
構造式（２７）－１：



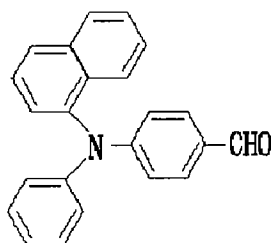
構造式（２７）－２：



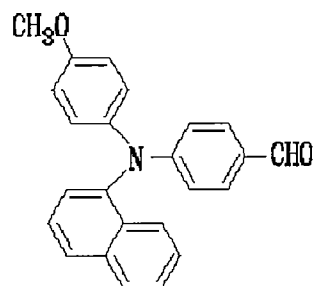
構造式 (27) - 3 :



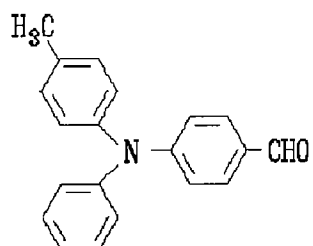
構造式 (27) - 4 :



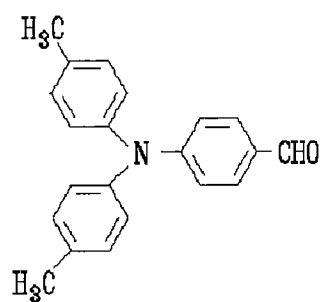
構造式 (27) - 5 :



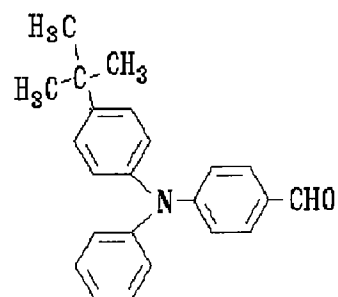
構造式 (27) - 6 :



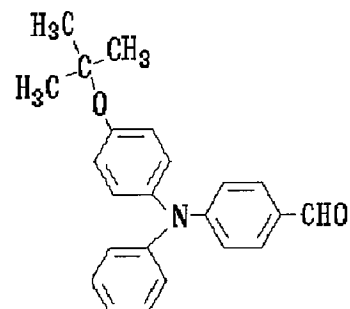
構造式 (27) - 7 :



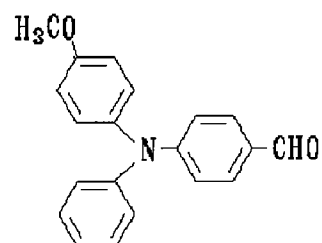
構造式 (27) - 8 :



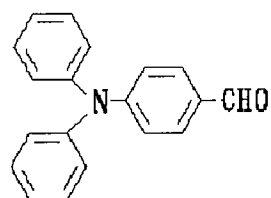
構造式 (27) - 9 :



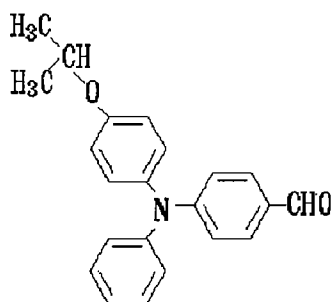
構造式 (27) - 10 :



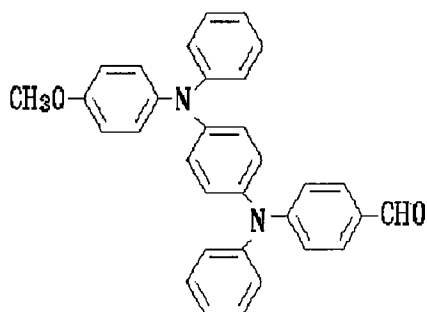
構造式 (27) - 11 :



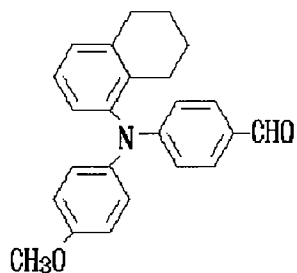
構造式 (27) - 12 :



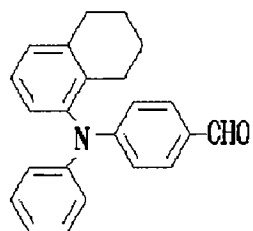
構造式 (27) - 13 :



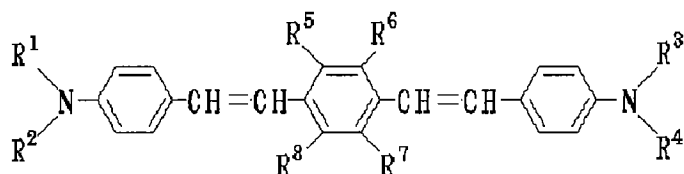
構造式 (27) - 14 :



構造式 (27) - 15 :



一般式 (1) :

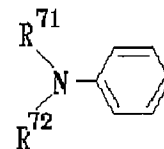


〔但し、前記一般式 (1) において、R² 及び R³ は無

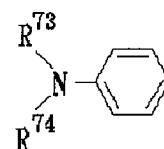
【請求項 43】 下記一般式〔IX〕又は〔X〕、或いは下記一般式〔IX'〕又は〔X'〕で表され、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕、或いは下記一般式〔XIX〕で表されるビス(アミノステリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられるトリアリールアミン。

【化 116】

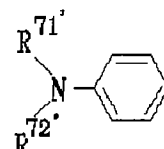
一般式〔IX〕 :



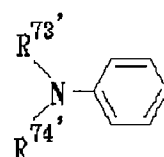
一般式〔X〕 :



一般式〔IX'〕 :



一般式〔X'〕 :

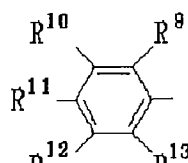


(但し、前記一般式〔IX〕及び〔X〕、〔IX'〕及び〔X'〕において、R⁷¹及びR⁷²はそれぞれ、下記R¹、R²、R¹⁴、R¹⁵、R²⁷、R²⁸、R⁴⁰又はR⁴¹に相当するアリール基であり、R^{71'}及びR^{72'}はそれぞれ、下記R⁹⁰又はR⁹¹に相当するアリール基であり、R⁷³及びR⁷⁴はそれぞれ、下記R³、R⁴、R¹⁶、R¹⁷、R²⁹、R³⁰、R⁴²又はR⁴³に相当するアリール基であり、R^{73'}及びR^{74'}はそれぞれ、下記R⁹²又はR⁹³に相当するアリール基である。)

【化 117】

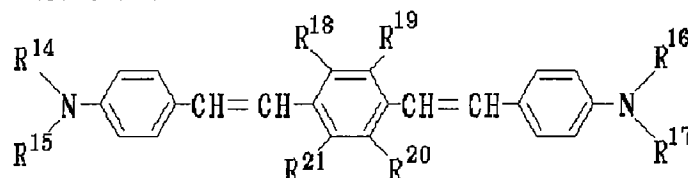
(1) で表されるアリール基であり

一般式 (1) :



(但し、前記一般式 (I) において、R⁹、R¹⁰、

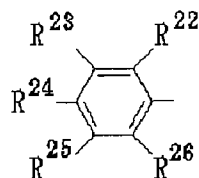
一般式 (II) :



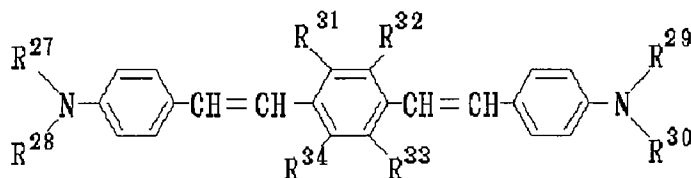
〔但し、前記一般式 (II) において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶ 及び R¹⁷ は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (2) で表されるアリール基であり

【化 1 2 0】

一般式 (2) :



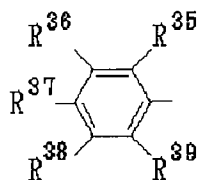
一般式 (III) :



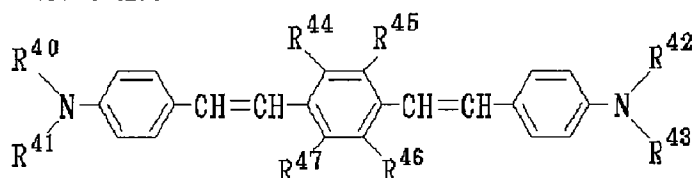
〔但し、前記一般式 (III) において、R²⁷、R²⁸、R²⁹ 及び R³⁰ は、少なくとも 1 つが下記一般式 (3) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化 1 2 2】

一般式 (3) :



一般式 (IV) :



〔但し、前記一般式 (IV) において、R⁴¹ 及び R⁴² は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表されるアリール基であり

R¹¹、R¹² 及び R¹³ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが炭素数 2 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁵、R⁶、R⁷ 及び R⁸ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化 1 1 9】

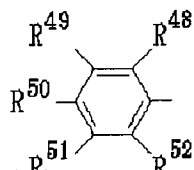
〔但し、前記一般式 (2) において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵ 及び R²⁶ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰ 及び R²¹ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化 1 2 1】

〔但し、前記一般式 (3) において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸ 及び R³⁹ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。)、R³¹、R³²、R³³ 及び R³⁴ は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

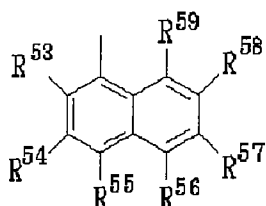
【化 1 2 3】

一般式(4) :

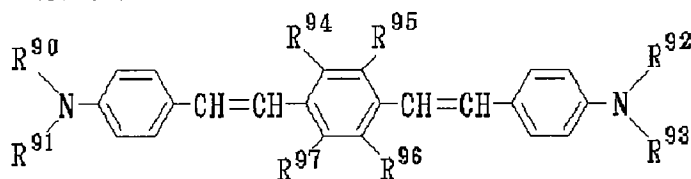


(但し、前記一般式(4)において、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰、R⁵¹及びR⁵²は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁴⁰及びR⁴³は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(5)で表されるアリール基であり
【化125】

一般式(5) :

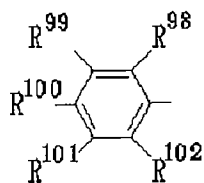


一般式(XIX) :



[但し、前記一般式(XIX)において、R⁹⁰、R⁹¹、R⁹²及びR⁹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式(40)で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり
【化127】

一般式(40) :



(但し、前記一般式(40)において、R⁹⁸、R⁹⁹、R¹⁰⁰、R¹⁰¹及びR¹⁰²は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁹⁴、R⁹⁵、R⁹⁶及びR⁹⁷は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。]

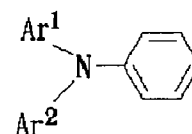
【請求項44】 下記一般式(28)又は(29)で表される、請求項43に記載したトリアリールアミン。

【化128】

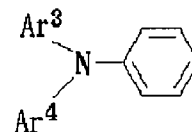
(但し、前記一般式(5)において、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸及びR⁵⁹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶及びR⁴⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化126】

一般式(28) :



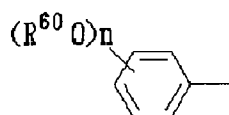
一般式(29) :



[但し、前記一般式(28)及び(29)において、Ar¹、Ar²、Ar³及びAr⁴はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式(6)、(7)、(8)及び(9)で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化129】

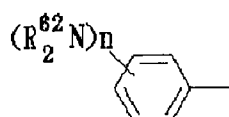
一般式 (6) :



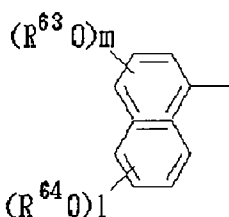
一般式 (7) :



一般式 (8) :



一般式 (9) :



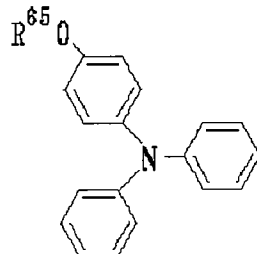
(但し、前記一般式 (6)、(7)、(8) 及び (9) において、R⁶⁰は炭素数 2 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基 (或いは、Ar¹、Ar²、Ar³ 及び Ar⁴ のすべてが一般式 (6) のアリール基である場合には、R⁶⁰は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基) であり、R⁶¹及び R⁶²は炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁶³及び R⁶⁴は互いに同一の又は異なる炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、n は 0～5 の整数であり、m は 0～3 の整数であり、l は 0～4 の整数である。)

【請求項 4 5】 前記 R⁶⁰の炭素数が 2～4 であり、前記 R⁶¹、R⁶²、R⁶³及び R⁶⁴の炭素数が 1～4 である、請求項 4 4 に記載したトリアリールアミン。

【請求項 4 6】 下記一般式 (3 0)、(3 1)、(3 2)、(3 3)、(3 4) 又は (3 5) で表される、請求項 4 4 に記載したトリアリールアミン。

【化 1 3 0】

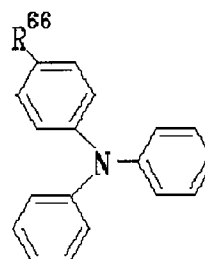
一般式 (3 0) :



～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 3 1】

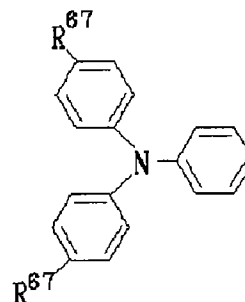
一般式 (3 1) :



(但し、前記一般式 (3 1) において、R⁶⁶は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 3 2】

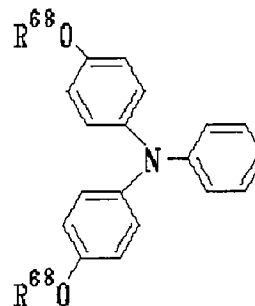
一般式 (3 2) :



(但し、前記一般式 (3 2) において、R⁶⁷は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 1 3 3】

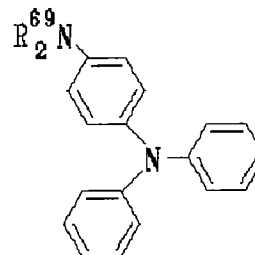
一般式 (3 3) :



(但し、前記一般式 (3 3) において、R⁶⁸は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

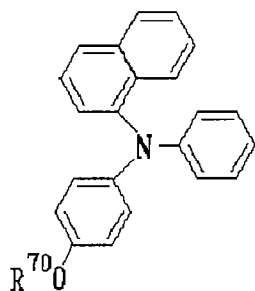
【化 1 3 4】

一般式 (3 4) :



(但し、前記一般式 (3 4) において、R⁶⁹は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

一般式(35)：

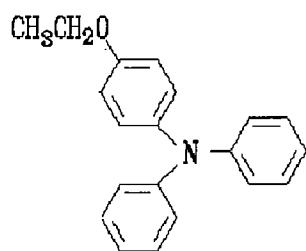


(但し、前記一般式(35)において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

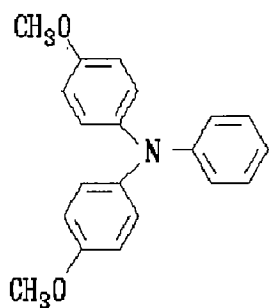
【請求項47】 下記構造式(36)-1、(36)-2、(36)-3、(36)-4、(36)-5、(36)-6、(36)-7、(36)-8、(36)-9、(36)-10又は(36)-11で表される、請求項44に記載したトリアリールアミン。

【化136】

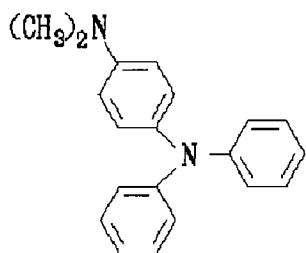
構造式(36)-1：



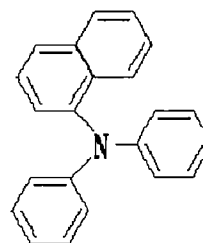
構造式(36)-2：



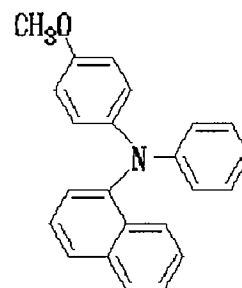
構造式(36)-3：



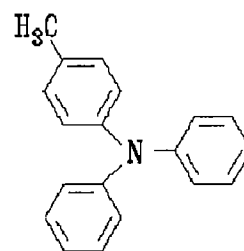
構造式(36)-4：



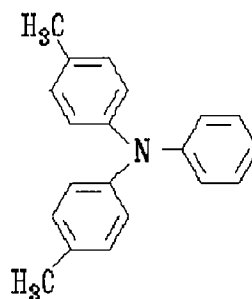
構造式(36)-5：



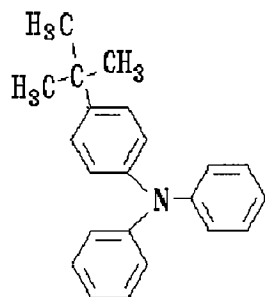
構造式(36)-6：



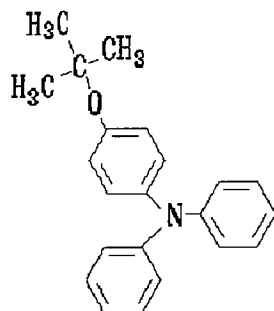
構造式(36)-7：



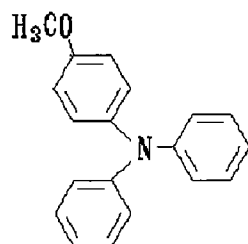
構造式(36)-8:



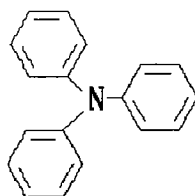
構造式(36)-9:



構造式(36)-10:



構造式(36)-11:

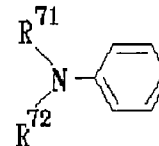


【請求項48】 下記一般式〔IX〕又は〔X〕、或いは下記一般式〔IX'〕又は〔X'〕で表され、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕、或いは下記一般式〔XIX〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられるトリアリールアミンを製造するに際し、下記一般式〔XI〕又は〔XI'〕で表されるジアリールアミンと下記一般式〔XII〕又は〔XII'〕で表されるハロゲン化ベンゼンとを触媒及び塩基の存在下でカップリングさせるか、或いは、下記一般式〔XIII〕又は〔XIII'〕で表されるジアリールアミンと下記一般式〔XIV〕又は〔XIV'〕で表されるハロゲ

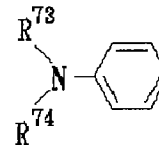
リングさせる、トリアリールアミンの製造方法。

【化137】

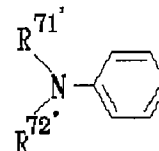
一般式〔IX〕:



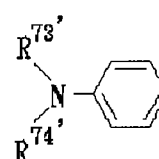
一般式〔X〕:



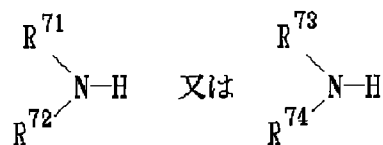
一般式〔IX'〕:



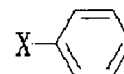
一般式〔X'〕:



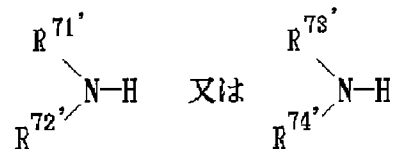
一般式〔XI〕:



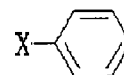
一般式〔XII〕:



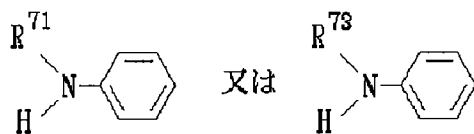
一般式〔XI'〕:



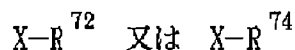
一般式〔XII'〕:



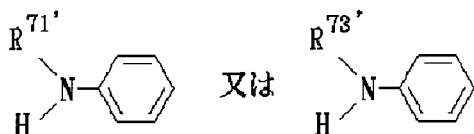
一般式〔XIII〕：



一般式〔XIV〕：



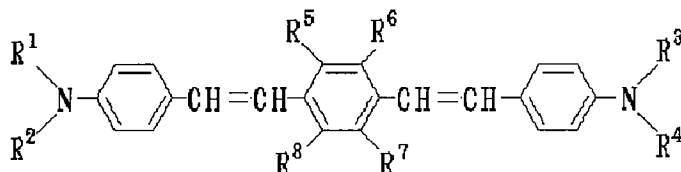
一般式〔XIII'〕：



一般式〔XIV'〕：

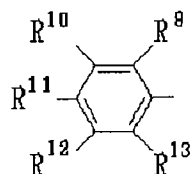


一般式〔I〕：

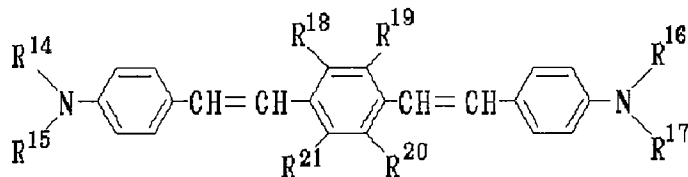


〔但し、前記一般式〔I〕において、 R^2 及び R^3 は無置換のアリール基であり、 R^1 及び R^4 は下記一般式〔1〕で表されるアリール基であり
【化139】

一般式〔1〕：



一般式〔II〕：



〔但し、前記一般式〔II〕において、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 及び R^{17} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式〔2〕で表されるアリール基であり
【化141】

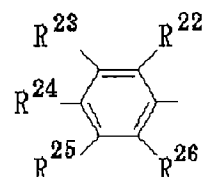
〔但し、前記一般式〔IX〕及び〔X〕、〔IX'〕及び〔X'〕、〔XI〕及び〔XII〕、〔XI'〕及び〔XI'〕、〔XIII〕及び〔XIV〕、〔XIII'〕及び〔XIV'〕において、 R^{71} 及び R^{72} はそれぞれ、下記 R^1 、 R^2 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{40} 又は R^{41} に相当するアリール基であり、 $R^{71'}$ 及び $R^{72'}$ はそれぞれ、下記 R^{90} 又は R^{91} に相当するアリール基であり、 R^{73} 及び R^{74} はそれぞれ、下記 R^3 、 R^4 、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{42} 又は R^{43} に相当するアリール基であり、 $R^{73'}$ 及び $R^{74'}$ はそれぞれ、下記 R^{92} 又は R^{93} に相当するアリール基であり、 X はハロゲン原子である。〕

【化138】

〔但し、前記一般式〔1〕において、 R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 及び R^{13} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。〕、 R^5 、 R^6 、 R^7 及び R^8 は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化140】

一般式〔2〕：

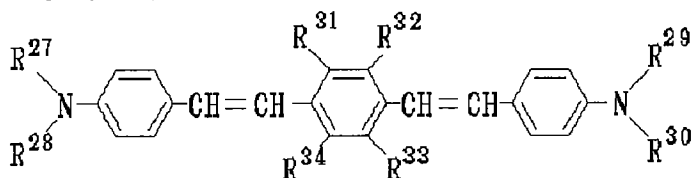


R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、そ

れらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化142】

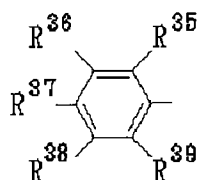
一般式〔Ⅲ〕：



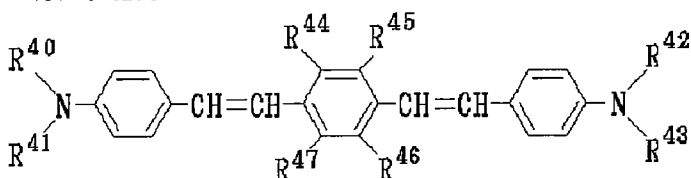
〔但し、前記一般式〔Ⅲ〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも1つが下記一般式（3）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化143】

一般式（3）：



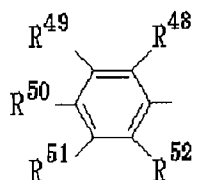
一般式〔Ⅳ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅳ〕において、R⁴¹及びR⁴²は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（4）で表されるアリール基であり

【化145】

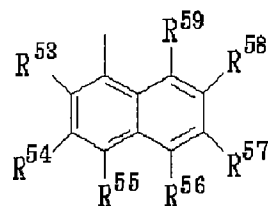
一般式（4）：



〔但し、前記一般式（4）において、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰、R⁵¹及びR⁵²は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R⁴⁰及びR⁴³は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（5）で表されるアリール基であり

【化146】

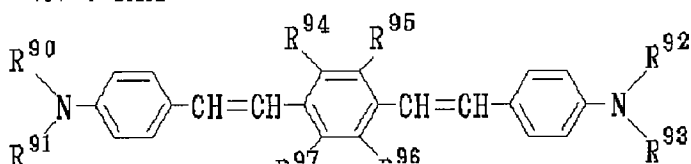
一般式（5）：



〔但し、前記一般式（5）において、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸及びR⁵⁹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶及びR⁴⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

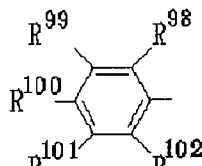
【化147】

一般式〔ⅩⅨ〕：



〔但し、前記一般式〔XIX〕において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式（40）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり
【化148】

一般式（40）：

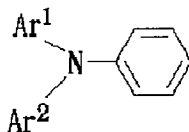


（但し、前記一般式（40）において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R^{100} 、 R^{101} 及び R^{102} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。） R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。〕

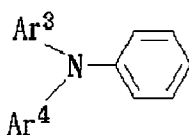
【請求項49】 下記一般式（28）又は（29）で表されるトリアリールアミンを得る、請求項48に記載したトリアリールアミンの製造方法。

【化149】

一般式（28）：



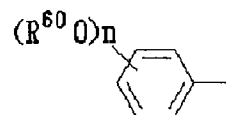
一般式（29）：



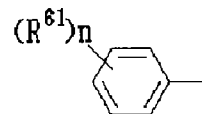
〔但し、前記一般式（28）及び（29）において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式（6）、（7）、（8）及び（9）で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化150】

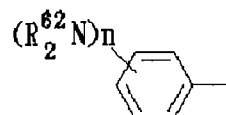
一般式（6）：



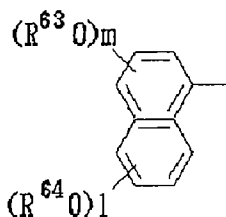
一般式（7）：



一般式（8）：



一般式（9）：



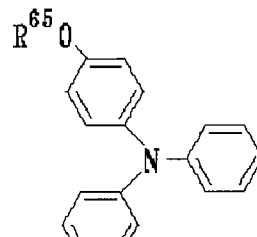
（但し、前記一般式（6）、（7）、（8）及び（9）において、 R^{60} は炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素基（或いは、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 のすべてが一般式（6）のアリール基である場合には、 R^{60} は炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基）であり、 R^{61} 及び R^{62} は炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{63} 及び R^{64} は互いに同一の又は異なる炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は0～5の整数であり、 m は0～3の整数であり、 l は0～4の整数である。）〕

【請求項50】 前記 R^{60} の炭素数を2～6とし、前記 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{63} 及び R^{64} の炭素数を1～6とする、請求項49に記載したトリアリールアミンの製造方法。

【請求項51】 下記一般式（30）、（31）、（32）、（33）、（34）又は（35）で表されるトリアリールアミンを得る、請求項49に記載したトリアリールアミンの製造方法。

【化151】

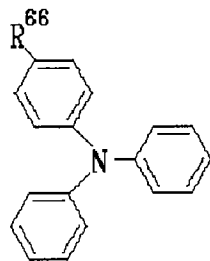
一般式（30）：



(但し、前記一般式(30)において、R⁶⁵は炭素数2～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化152】

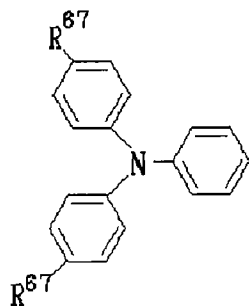
一般式(31)：



(但し、前記一般式(31)において、R⁶⁶は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化153】

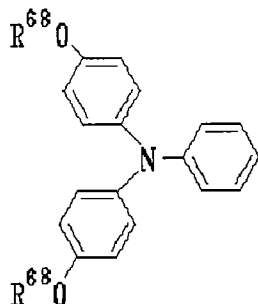
一般式(32)：



(但し、前記一般式(32)において、R⁶⁷は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化154】

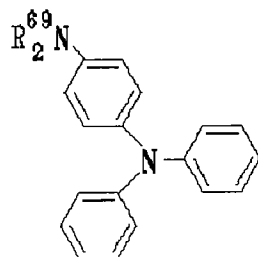
一般式(33)：



(但し、前記一般式(33)において、R⁶⁸は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化155】

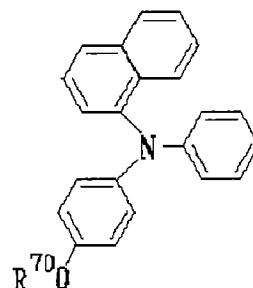
一般式(34)：



(但し、前記一般式(34)において、R⁶⁹は炭素数1

【化156】

一般式(35)：

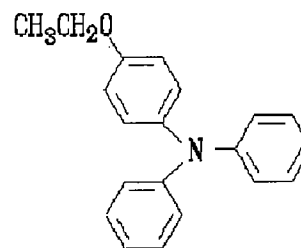


(但し、前記一般式(35)において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

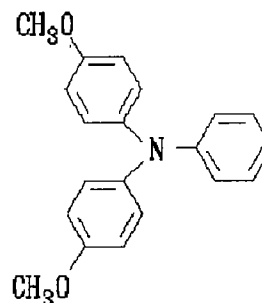
【請求項52】 下記構造式(36)-1、(36)-2、(36)-3、(36)-4、(36)-5、(36)-6、(36)-7、(36)-8、(36)-9、(36)-10又は(36)-11で表されるトリアリールアミンを得る、請求項49に記載したトリアリールアミンの製造方法。

【化157】

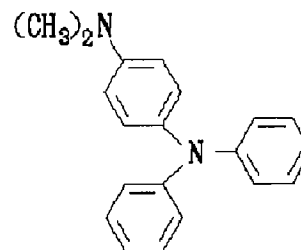
構造式(36)-1：



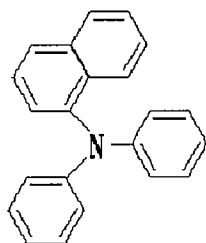
構造式(36)-2：



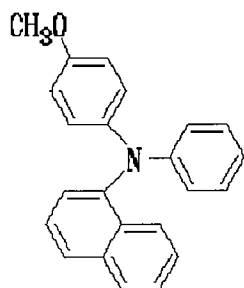
構造式(36)-3：



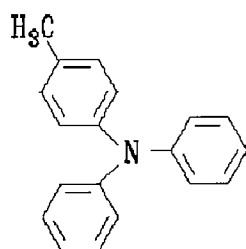
構造式(36)-4:



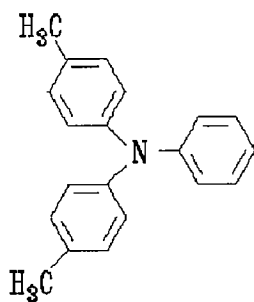
構造式(36)-5:



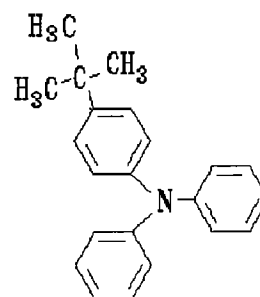
構造式(36)-6:



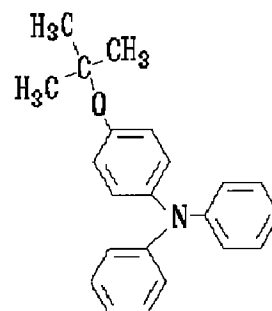
構造式(36)-7:



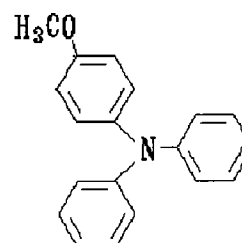
構造式(36)-8:



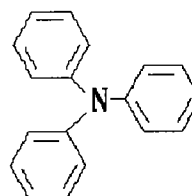
構造式(36)-9:



構造式(36)-10:



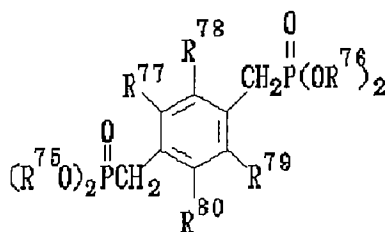
構造式(36)-11:



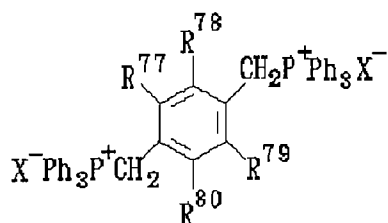
【請求項53】 下記一般式〔VII〕又は〔VIII〕、或いは〔VII'〕又は〔VIII'〕で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩。

【化158】

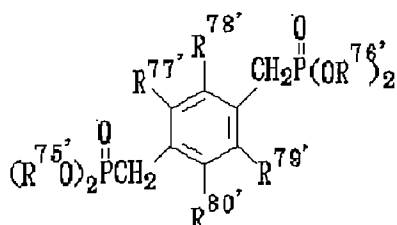
一般式〔VII〕：



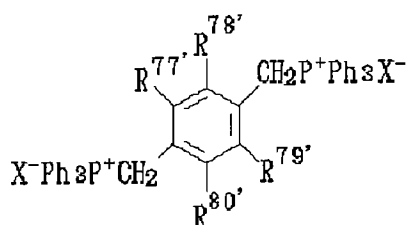
一般式〔VIII〕：



一般式〔VII'〕：



一般式〔VIII'〕：

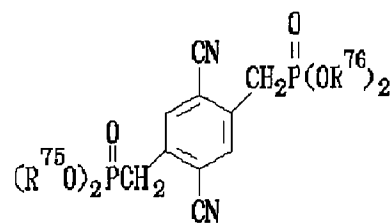


(但し、前記一般式〔VII〕及び〔VIII〕、或いは〔VII'〕及び〔VIII'〕において、R⁷⁵及びR⁷⁶、或いはR^{75'}及びR^{76'}はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、R⁷⁷、R⁷⁸、R⁷⁹及びR⁸⁰はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子であり、R^{77'}、R^{78'}、R^{79'}及びR^{80'}はそれぞれ、互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子であり、Xはハロゲン原子である。)

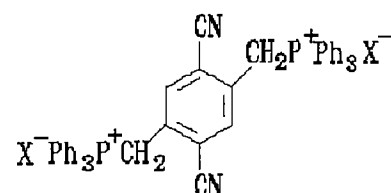
【請求項54】 前記R⁷⁵及びR⁷⁶、R^{75'}及びR^{76'}が炭素数1～4の飽和炭化水素基である、請求項53に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩。

【請求項55】 下記一般式(19)又は(20)、或いは(19')又は(20')で表される、請求項53に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩。

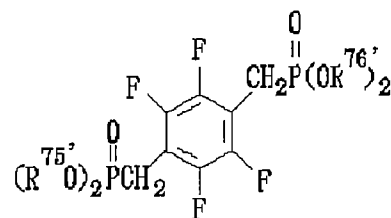
一般式(19)：



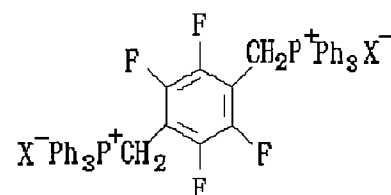
一般式(20)：



一般式(19')：



一般式(20')：

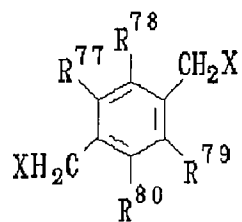


(但し、前記一般式(19)、(20)、(19')及び(20')において、R⁷⁵、R⁷⁶、R^{75'}、R^{76'}及びXは前記したものと同じである。)

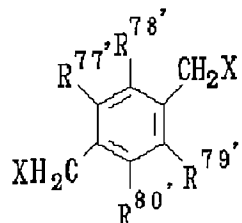
【請求項56】 下記一般式〔XV〕又は〔XV'〕で表されるハロゲン化アリール化合物と、下記一般式〔XVI〕で表される亜リン酸トリアルキル又はトリフェニルホスフィン(PPh₃)とを反応させることによって、下記一般式〔VII〕又は〔VIII〕、或いは〔VII'〕又は〔VII'〕で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩を得る、ジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩の製造方法。

【化160】

一般式〔XV〕：



一般式〔XV'〕：



(但し、前記一般式〔XV〕及び〔XV'〕において、 R^{77} 、 R^{78} 、 R^{79} 及び R^{80} はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子であり、 $R^{77'}$ 、 $R^{78'}$ 、 $R^{79'}$ 及び $R^{80'}$ はそれぞれ、互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子であり、 X はハロゲン原子である。)

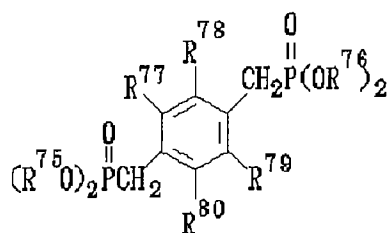
一般式〔XVI〕：

$P(OR^{81})_3$ 又は $P(OR^{82})_3$

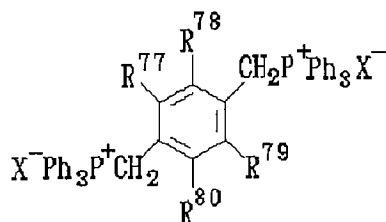
(但し、前記一般式〔XVI〕において、 R^{81} 及び R^{82} はそれぞれ、同一の又は異なる炭化水素基である。)

【化161】

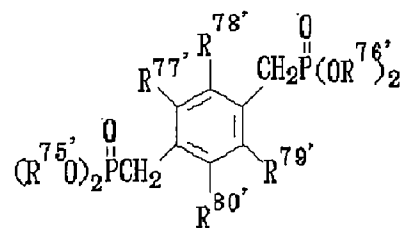
一般式〔VII〕：



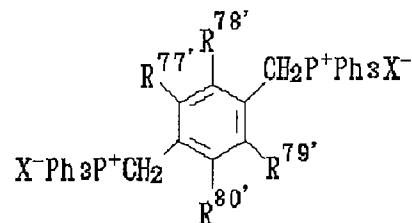
一般式〔VIII〕：



一般式〔VII'〕：



一般式〔VIII'〕：



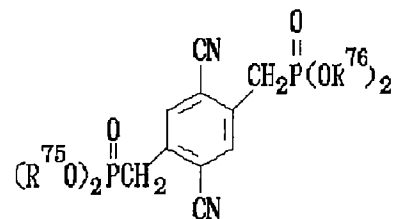
(但し、前記一般式〔VII〕及び〔VIII〕、〔VII'〕及び〔VIII'〕において、 R^{75} 及び R^{76} 、或いは $R^{75'}$ 及び $R^{76'}$ はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、 R^{77} 、 R^{78} 、 R^{79} 、 R^{80} 、 $R^{77'}$ 、 $R^{78'}$ 、 $R^{79'}$ 、 $R^{80'}$ 及び X は前記したものと同じである。)

【請求項57】 前記 R^{75} 及び R^{76} 、 $R^{75'}$ 及び $R^{76'}$ は炭素数1～4の飽和炭化水素基とする、請求項56に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩の製造方法。

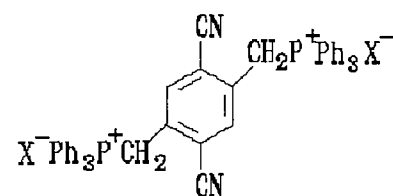
【請求項58】 下記一般式(19)又は(20)、或いは(19')又は(20')で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩を得る、請求項56に記載したジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩の製造方法。

【化162】

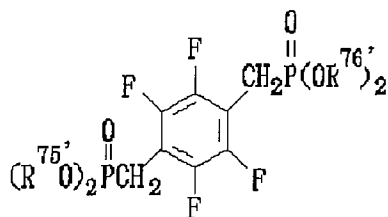
一般式(19)：



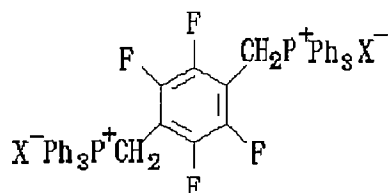
一般式(20)：



一般式 (19') :



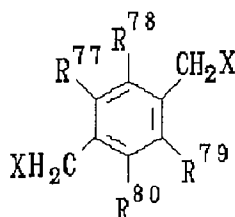
一般式 (20') :



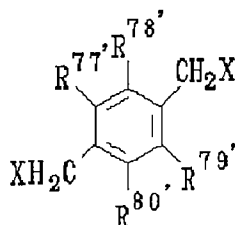
【請求項59】 下記一般式〔XV〕又は〔XV'〕で表されるハロゲン化アリール化合物。

【化163】

一般式〔XV〕 :



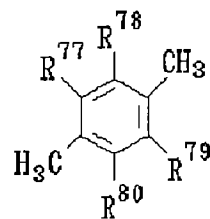
一般式〔XV'〕 :



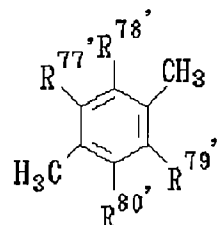
(但し、前記一般式〔XV〕及び〔XV'〕において、
R⁷⁷、R⁷⁸、R⁷⁹及びR⁸⁰はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子であり、R^{77'}、R^{78'}、R^{79'}及びR^{80'}はそれぞれ、互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子であり、Xはハロゲン原子である。)

【請求項60】 下記一般式〔XVII〕又は〔XVII'〕で表されるキシレン化合物と、下記一般式〔XVIII〕で表されるN-ハロゲン化スクシンイミドとを光照射下に反応させることによって、下記一般式〔XV〕又は〔XV'〕で表されるハロゲン化アリール化合物を得る、ハロゲン化アリール化合物の製造方法。

一般式〔XVII〕 :



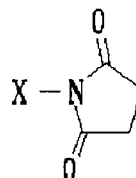
一般式〔XVII'〕 :



(但し、前記一般式〔XVII〕及び〔XVII'〕において、
R⁷⁷、R⁷⁸、R⁷⁹及びR⁸⁰はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子であり、R^{77'}、R^{78'}、R^{79'}及びR^{80'}はそれぞれ、互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。)

【化165】

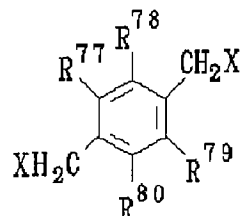
一般式〔XVIII〕 :



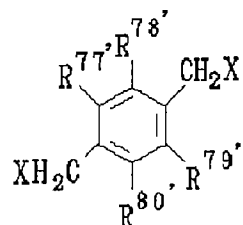
(但し、前記一般式〔XVIII〕において、Xはハロゲン原子である。)

【化166】

一般式〔XV〕 :



一般式〔XV'〕 :



(但し、前記一般式〔XV〕及び〔XV'〕において、 R^{77} 、 R^{78} 、 R^{79} 及び $R^{77'}$ 、 $R^{78'}$ 、 $R^{79'}$ 及び $R^{80'}$ はそれぞれ、前記したものと同一であり、Xはハロゲン原子である。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、所望の発光色を呈する有機発光材料として好適なビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物及びその合成中間体、並びにこれらの製造方法に関するものである。

【0002】

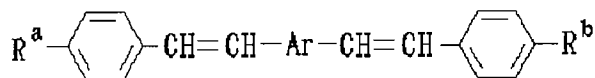
【従来の技術】自発光であって、応答速度が高速であり、視野角依存性の無いフラットパネルディスプレイの1候補として、有機電界発光素子(EL素子)等が近時注目されており、その構成材料として、有機発光材料への関心が高まっている。有機発光材料の第一の利点は、分子設計によって材料の光学的な性質をある程度コントロールできるところにあり、これによって赤、青、緑色の3原色発光をすべて各々の有機発光材料で作成したフルカラー有機発光素子の実現が可能である。

【0003】下記一般式〔A〕で示されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物は、導入される置換基に依存して、可視部領域に青～赤の強い発光を呈することから、有機電界発光素子材料に限らず、さまざまな用途に利用可能である。さらに、これら材料は昇華性であり、真空蒸着等のプロセスによって、均一なアモルファス膜を形成しうる利点がある。今日では、分子軌道計算等により、材料の光学的な性質がある程度までは予測可能であるが、実際には要求される材料を高効率に製造する技術が産業上もっとも重要であることは、いうまでもない。

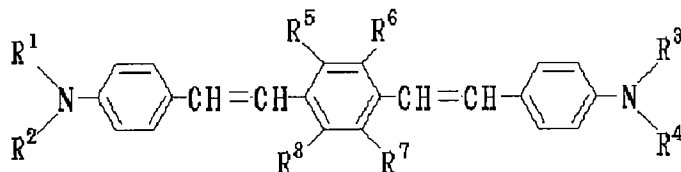
【0004】

【化167】

一般式〔A〕：



一般式〔I〕：



〔但し、前記一般式〔I〕において、 R^2 及び R^3 は無置換のアリール基であり、 R^1 及び R^4 は下記一般式(1)で表されるアリール基であり

【化169】

(但し、前記一般式〔A〕において、Arは置換基を有してもよいアリール基であり、 R^a 及び R^b はそれぞれ、水素原子、飽和又は不飽和の炭化水素基、置換基を有してもよいアリール基、シアノ基、ハロゲン原子、ニトロ基、アルコキシル基を示し、これらは同一であっても異なってもよい。)

【0005】

【発明が解決しようとする課題】これまで、有機発光材料として前記一般式〔A〕に属する多くの化合物が製造されてきたが、これらの材料の蛍光(発光)は多くが青～緑色であり、黄色～赤色の発光を呈するものはわずかに報告されているのみであり〔電気情報通信学会、技術研究報告、有機エレクトロニクス、17,7(1992)、Inorganic and Organic Electroluminescence 96 Berlin, 101(1996)等〕、またその高効率な製造法も確立されていなかった。

【0006】本発明の目的は、上記のような現状に鑑み、強い発光を呈する特に黄色～赤色の有機発光材料として好適な化合物及びその合成中間体と、これらを高効率に製造する方法を提供することにある。

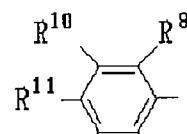
【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、一般式〔I〕、〔I'〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物が強い発光を呈し、黄色～赤色の発光材料となりうることを見出し、かつその一般的かつ高効率な製造方法を確立し、本発明に到達したものである。

【0008】即ち、本発明はまず、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(以下、本発明の第1の化合物と称する。)に係るものである。

【化168】

一般式(1)：

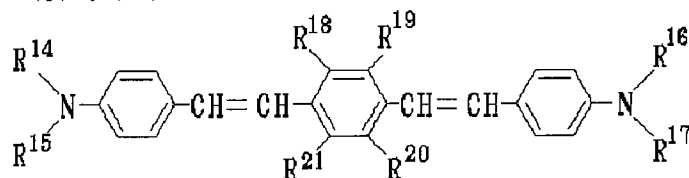


(但し、前記一般式(1)において、R⁹、R¹⁰、R¹¹、R¹²及びR¹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は互いに同一の又は

異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子(F、Cl、Br、I等：以下、同様)である。]

【化170】

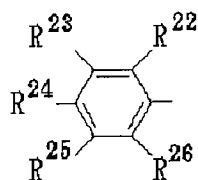
一般式(II)：



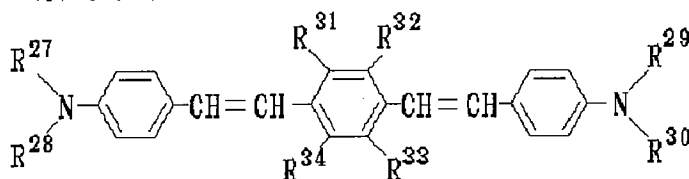
〔但し、前記一般式(II)において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(2)で表されるアリール基であり

【化171】

一般式(2)：



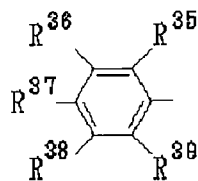
一般式(III)：



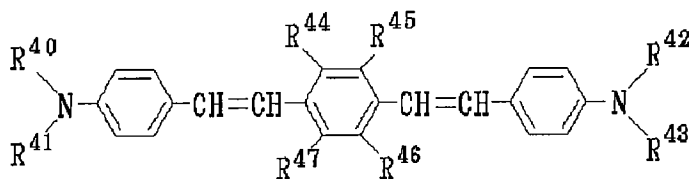
〔但し、前記一般式(III)において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は少なくとも1つが下記一般式(3)で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化173】

一般式(3)：



一般式(IV)：



〔但し、前記一般式(IV)において、R⁴¹及びR⁴²は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(4)で表されるアリール基であり

【化175】

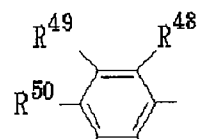
(但し、前記一般式(2)において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化172】

(但し、前記一般式(3)において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。)、R³¹、R³²、R³³及びR³⁴は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

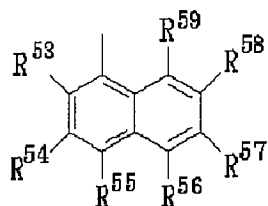
【化174】

一般式(4)：



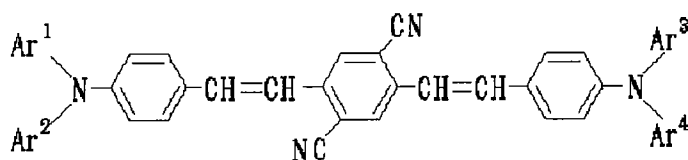
(但し、前記一般式(4)において、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 、 R^{51} 及び R^{52} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{40} 及び R^{43} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(5)で表されるアリール基であり
【化176】

一般式(5)：



(但し、前記一般式(5)において、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)

一般式：



〔但し、前記一般式において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式(6)、(7)、(8)及び(9)で表されるアリール基から選ばれた基である。
【化178】

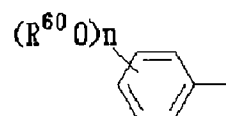
なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【0009】本発明の第1の化合物は、黄色～赤色の発光を示す有機発光材料として有効に利用することができ、また、高いガラス転移点及び融点を有する物質であり、電氣的、熱的或いは化学的な安定性に優れている上、非晶質でガラス状態を容易に形成し得るので、蒸着等を行うこともできる。

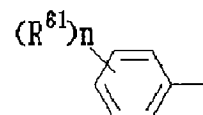
【0010】本発明の第1の化合物は、下記一般式で表されるものが好ましい。

【化177】

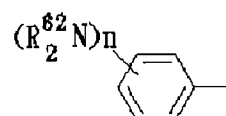
一般式(6)：



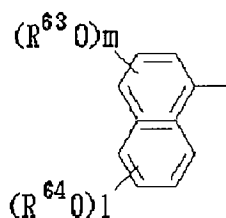
一般式(7)：



一般式(8)：



一般式(9)：



(但し、前記一般式(6)、(7)、(8)及び(9)において、 R^{60} は炭素数2以上、特に2～4の飽和又は不飽和の炭化水素基(或いは、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3

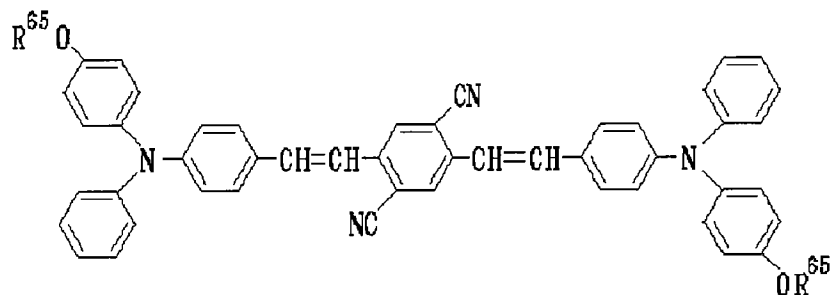
場合には、R⁶⁰は炭素数1以上、特に2以上、6以下（以下、同様）の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁶¹及びR⁶²は炭素数1以上、特に1～6（以下、同様）の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R⁶³及びR⁶⁴はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭素数1以上、特に1～6（以下、同様）の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、nは0～5の整数であり、mは0～3の

整数であり、lは0～4の整数である。）]

【0011】本発明の第1の化合物は、より具体的には、下記一般式（9）、（10）、（11）、（12）、（13）、（14）、（15）又は（15'）で表されるものがよい。

【化179】

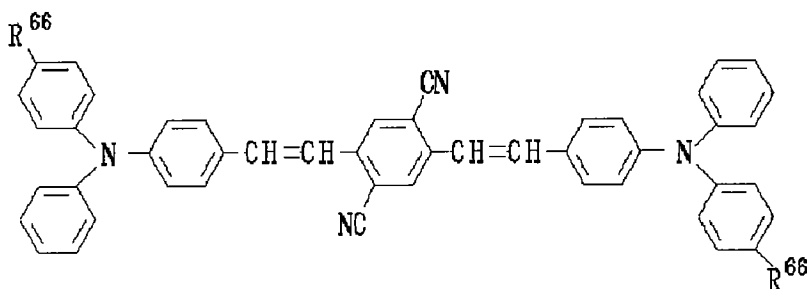
一般式（10）：



（但し、前記一般式（10）において、R⁶⁵は炭素数2～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化180】

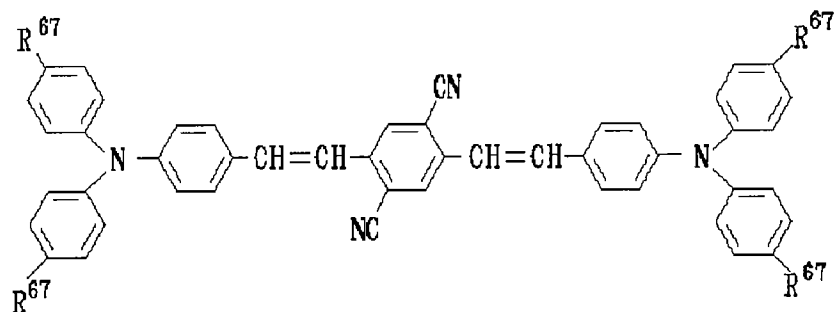
一般式（11）：



（但し、前記一般式（11）において、R⁶⁶は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

【化181】

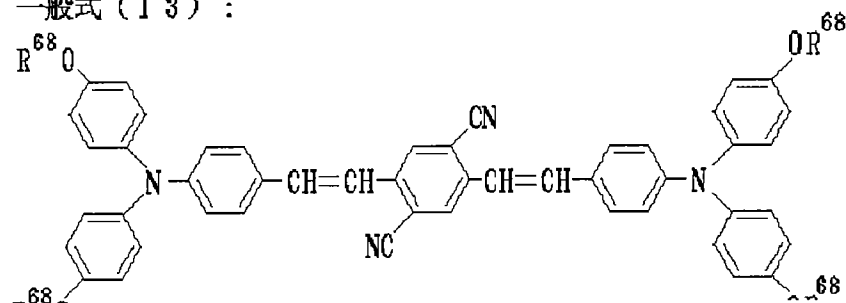
一般式（12）：



（但し、前記一般式（12）において、R⁶⁷は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。）

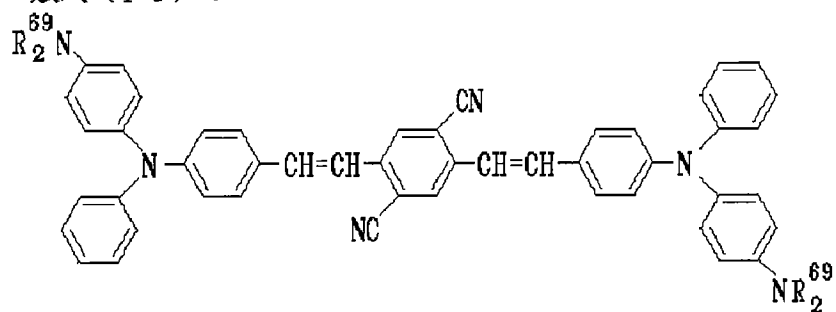
【化182】

一般式（13）：



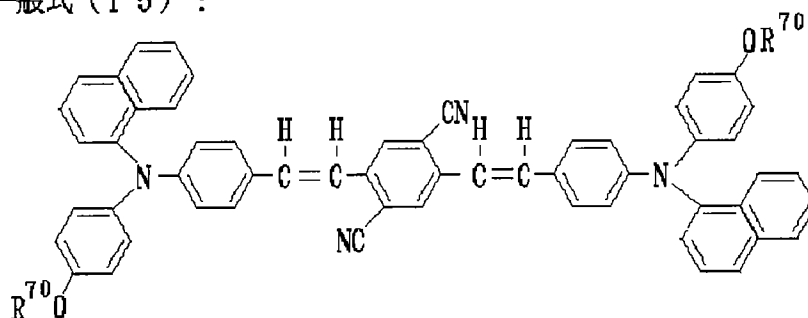
(但し、前記一般式(13)において、R⁶⁸は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化183】

一般式(14) :



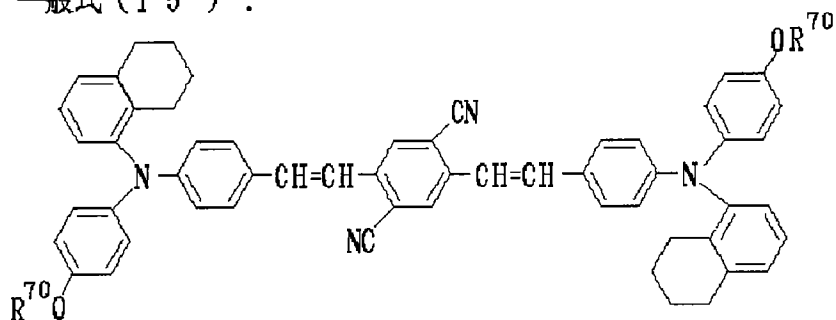
(但し、前記一般式(14)において、R⁶⁹は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化184】

一般式(15) :



(但し、前記一般式(15)において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。) 【化185】

一般式(15') :



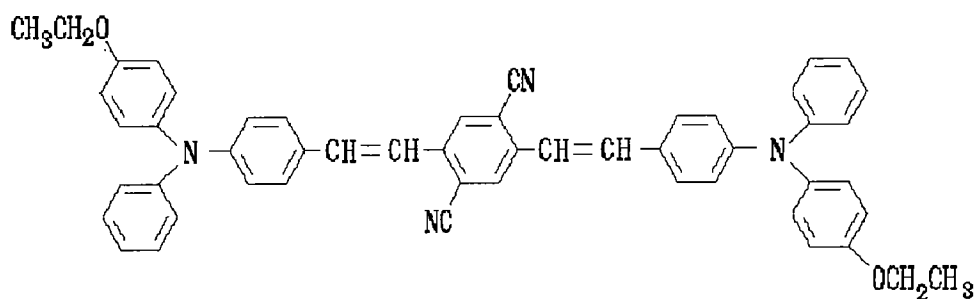
(但し、前記一般式(15')において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和炭化水素基である。)

【0012】本発明の第1の化合物は、下記構造式(16)-1、(16)-2、(16)-3、(16)-4、(16)-5、(16)-6、(16)-7、(1

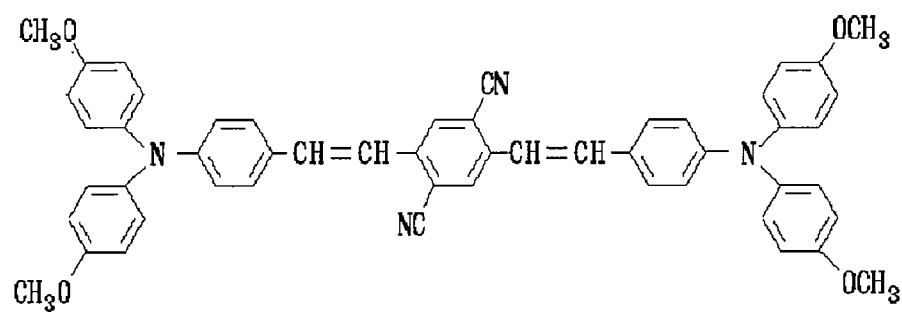
6)-8、(16)-9、(16)-10、(16)-11、(16)-12又は(16)-13で表されるものが具体的に例示される。

【化186】

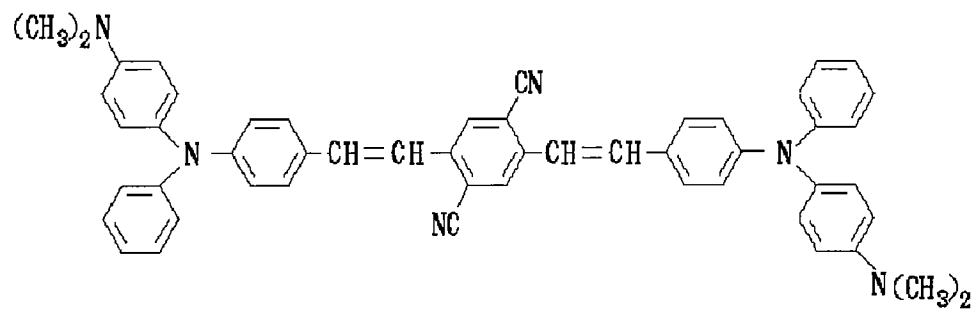
構造式(16)-1 :



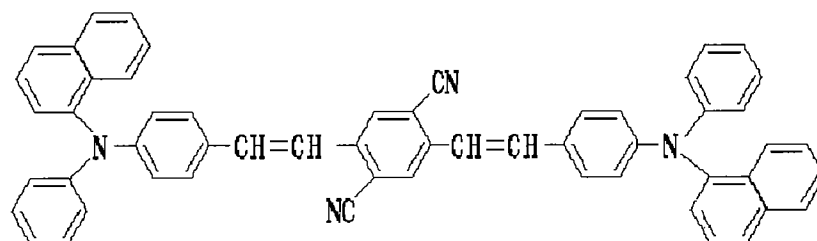
構造式 (16) - 2 :



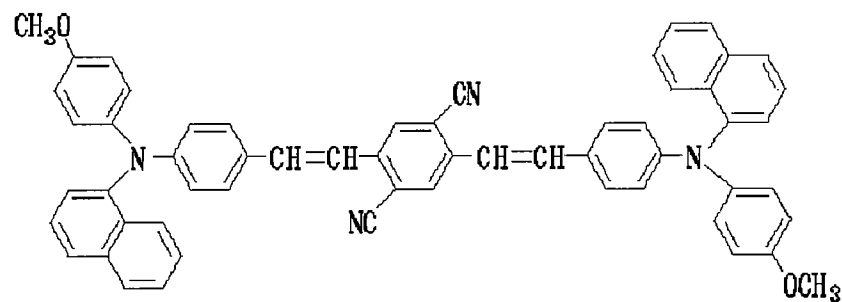
構造式 (16) - 3 :



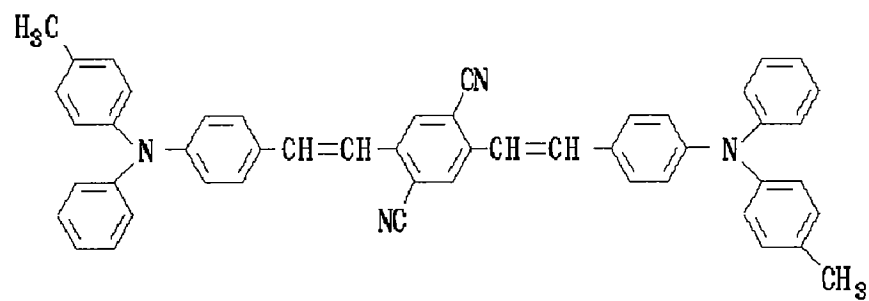
構造式 (16) - 4 :



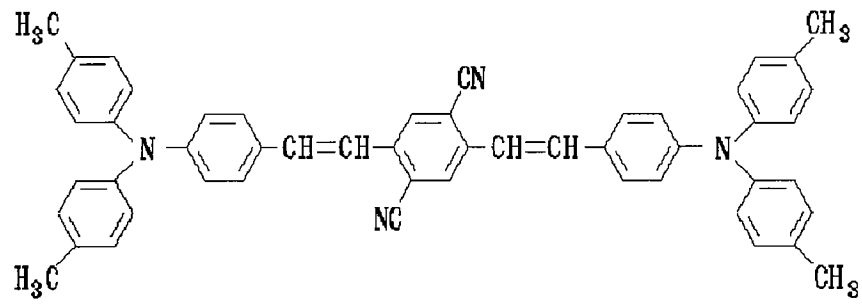
構造式 (16) - 5 :



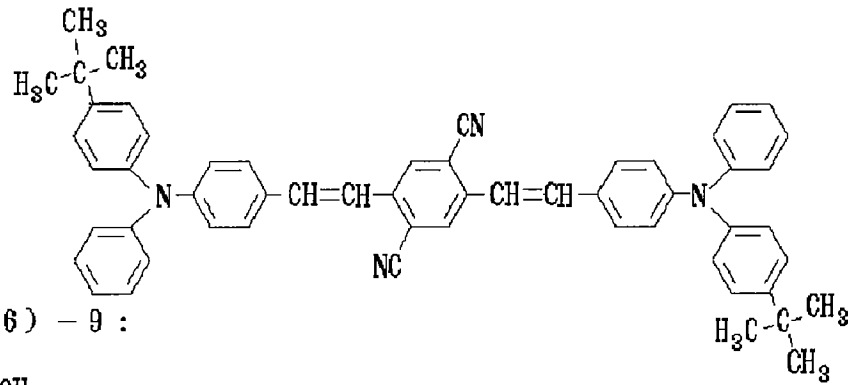
構造式 (16) - 6 :



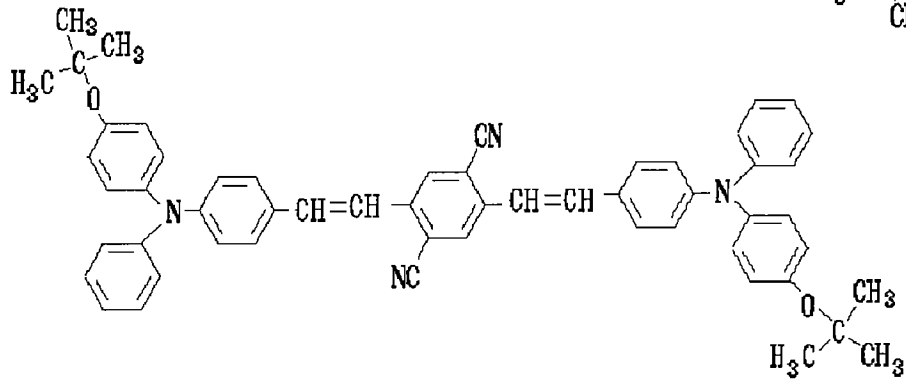
構造式 (16) - 7 :



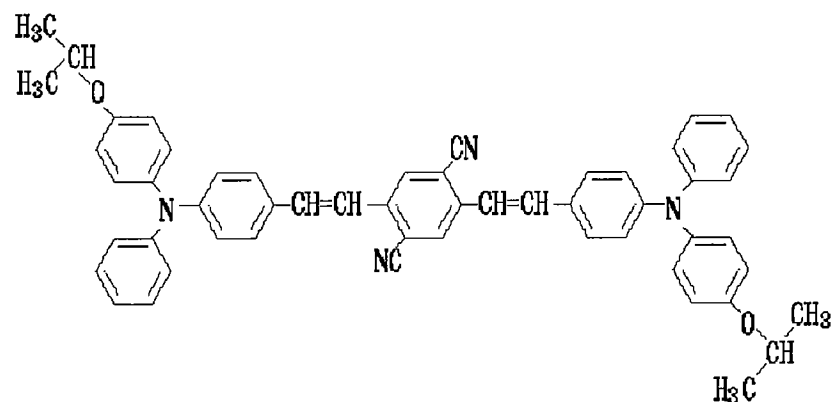
構造式 (16) - 8 :



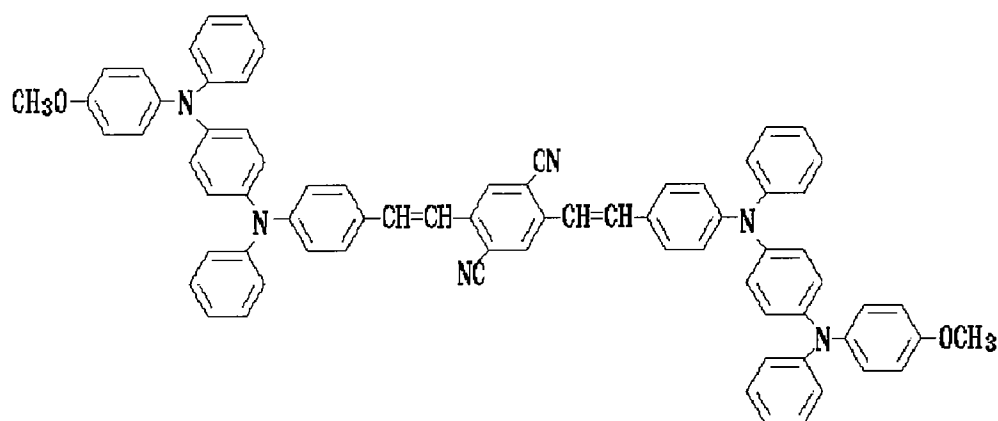
構造式 (16) - 9 :



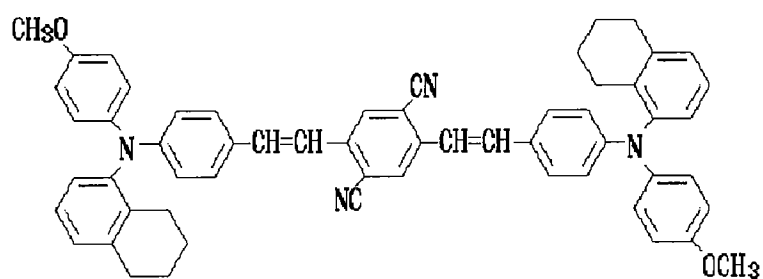
構造式 (16) - 10 :



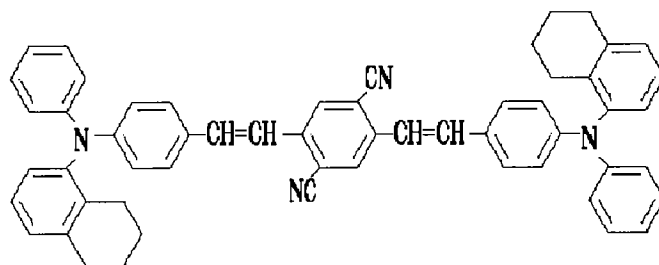
構造式 (16) - 11 :



構造式 (16) - 12 :

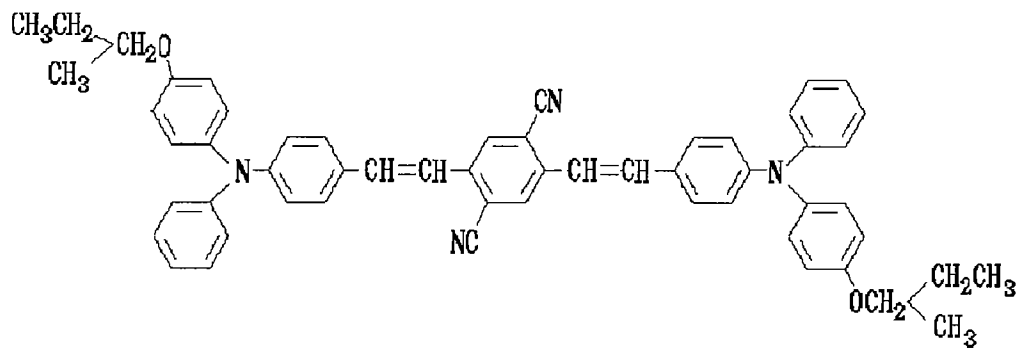
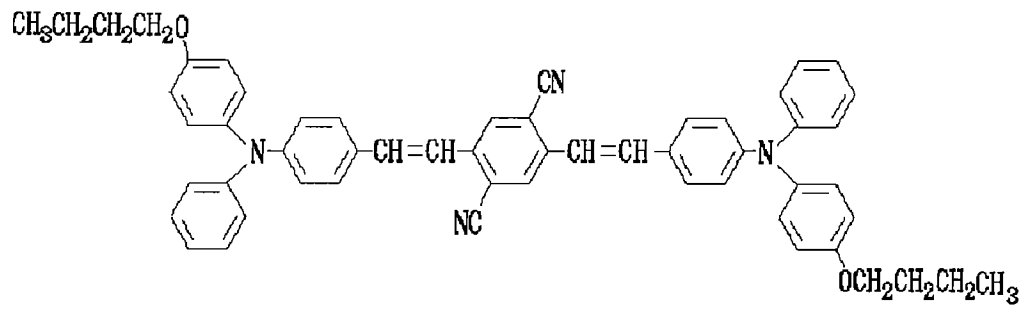
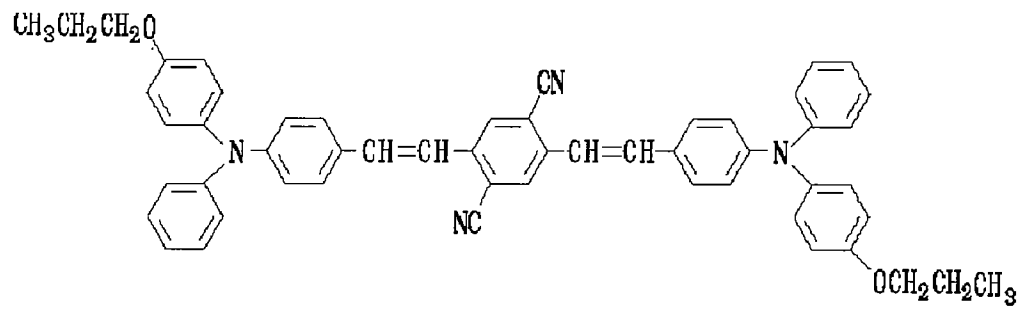


構造式 (16) - 13 :



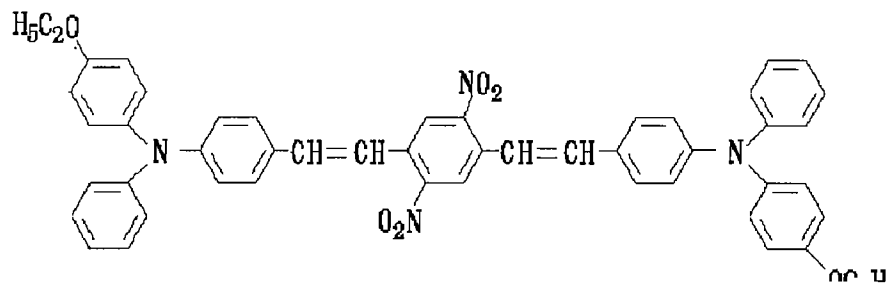
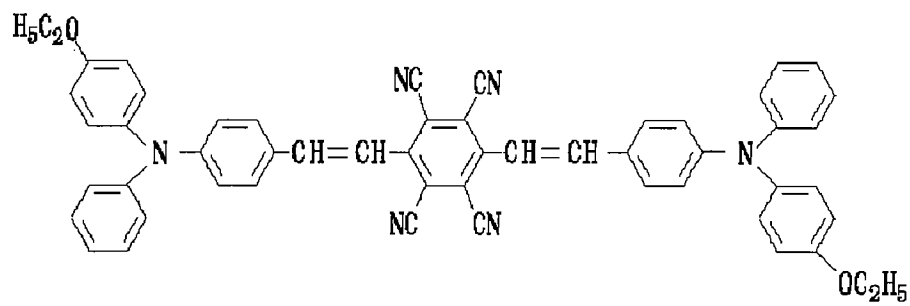
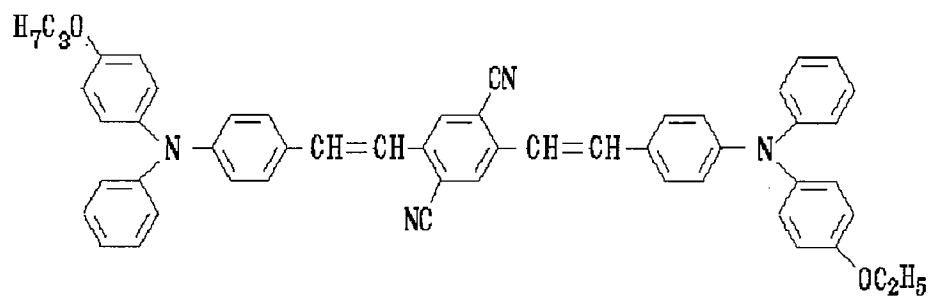
【0013】これら以外にも、次の化合物も例示することができる。

【化187】



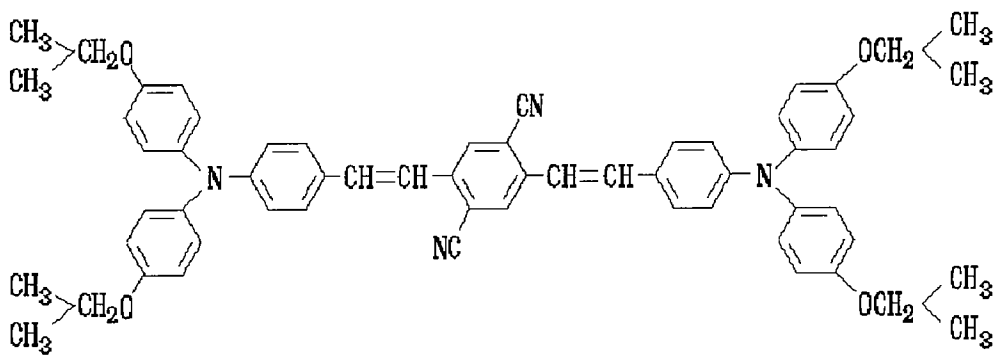
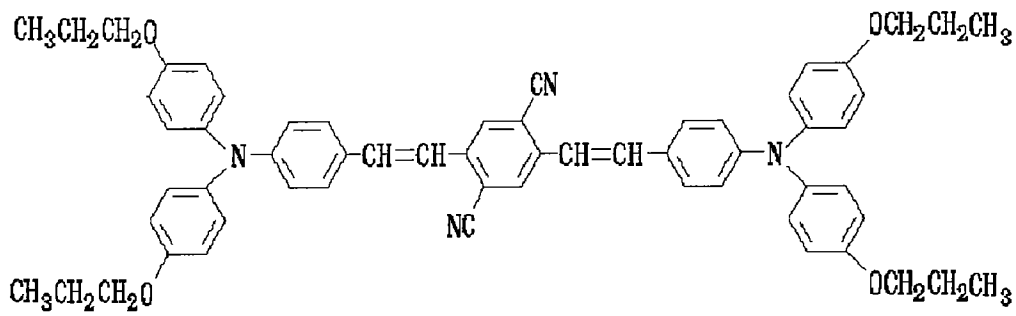
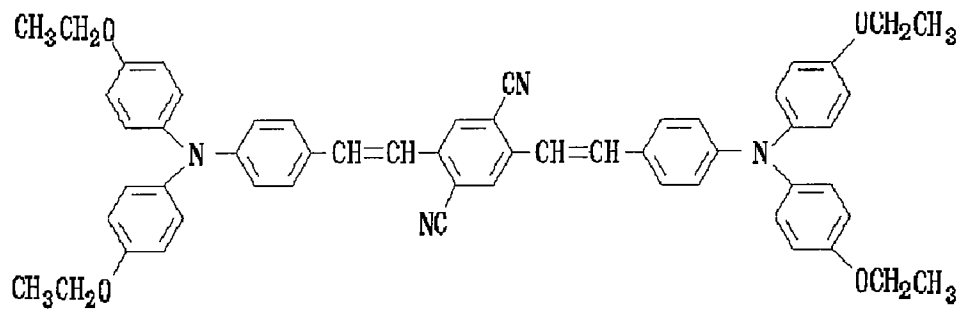
【0014】

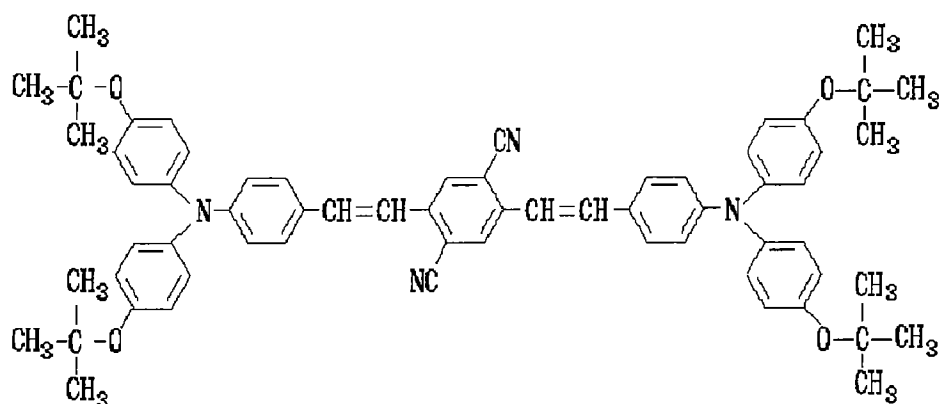
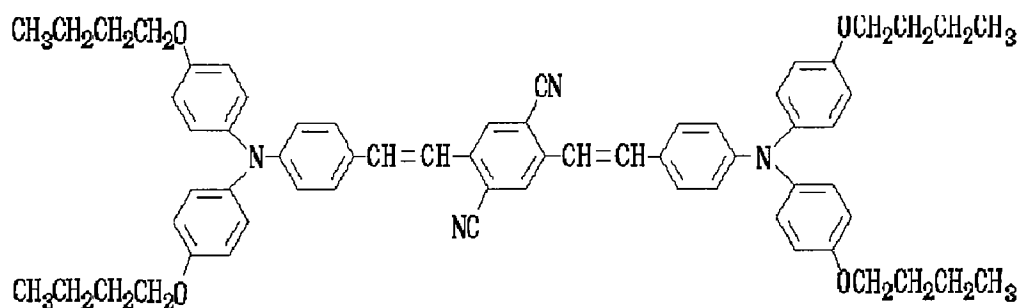
【化188】



【0015】

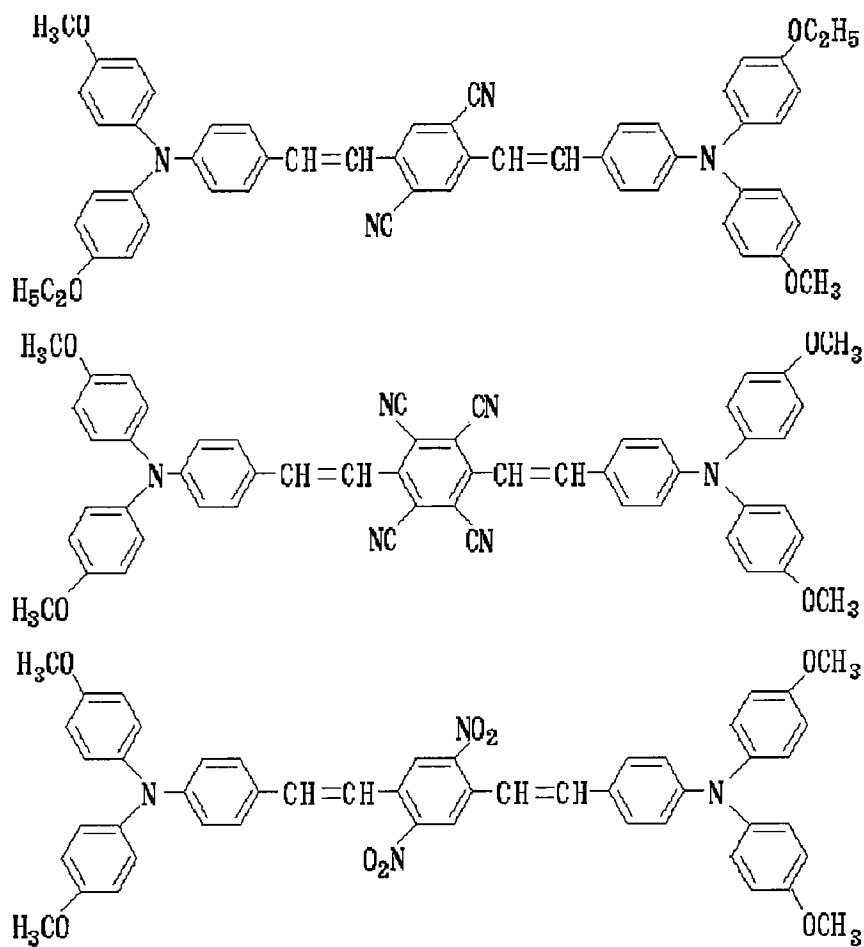
【化189】

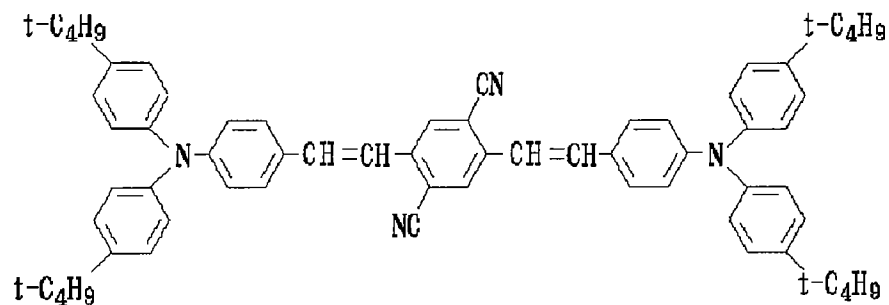




【0016】

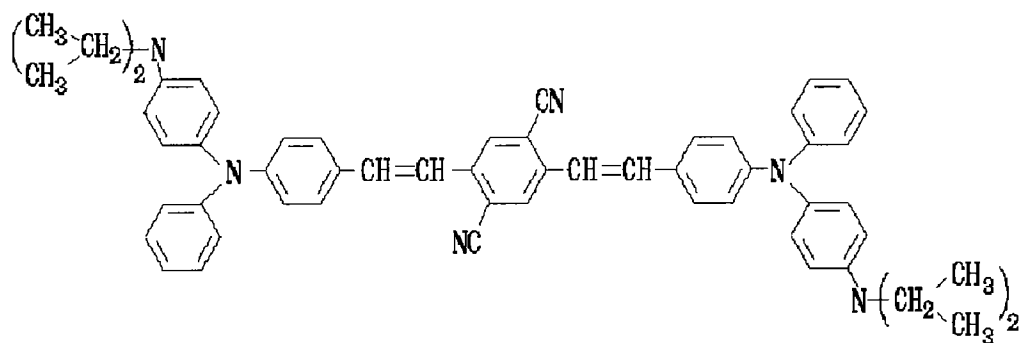
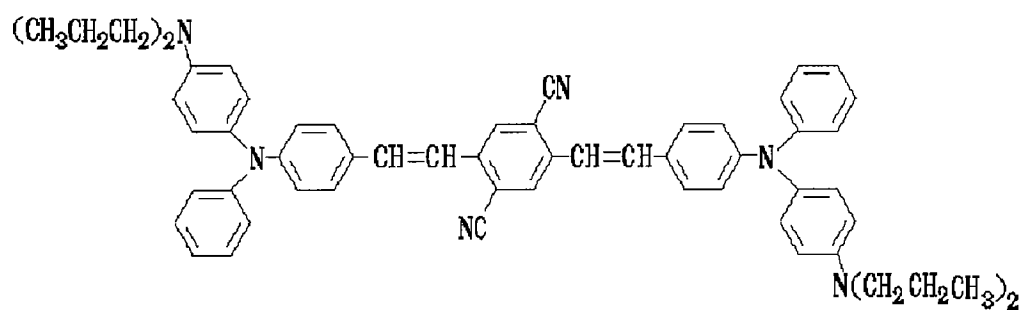
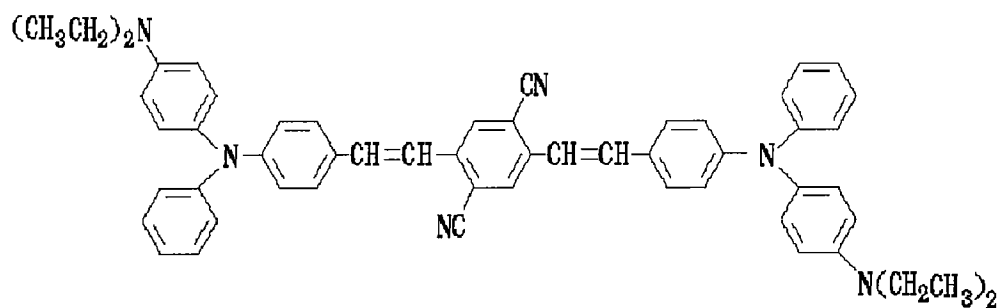
【化190】

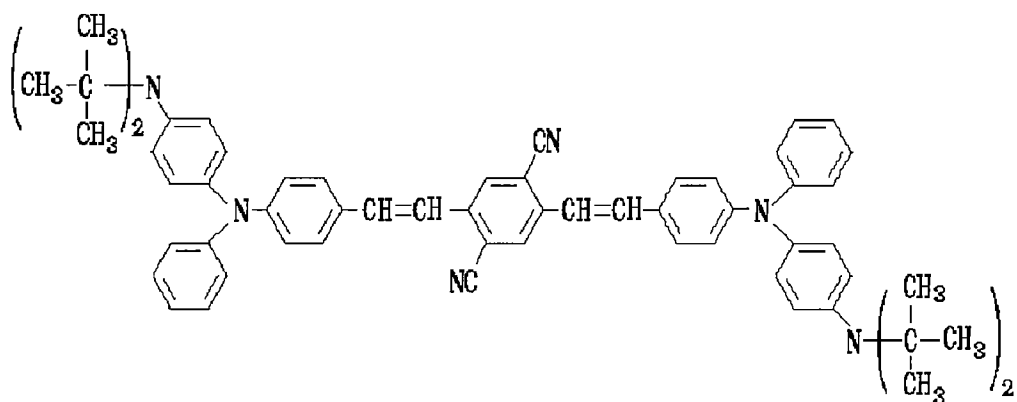
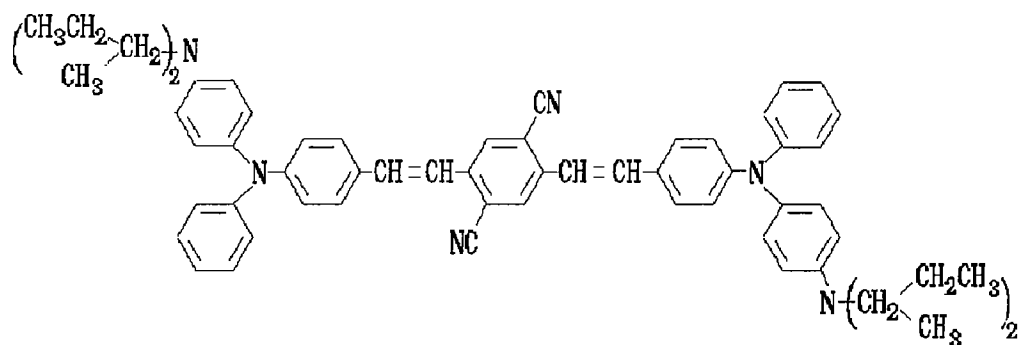
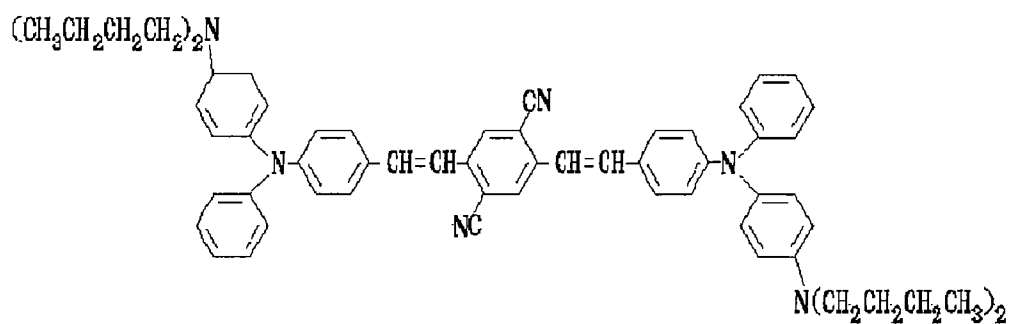




【0017】

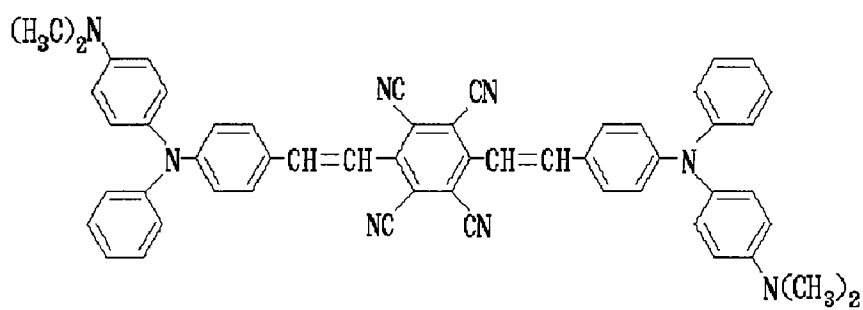
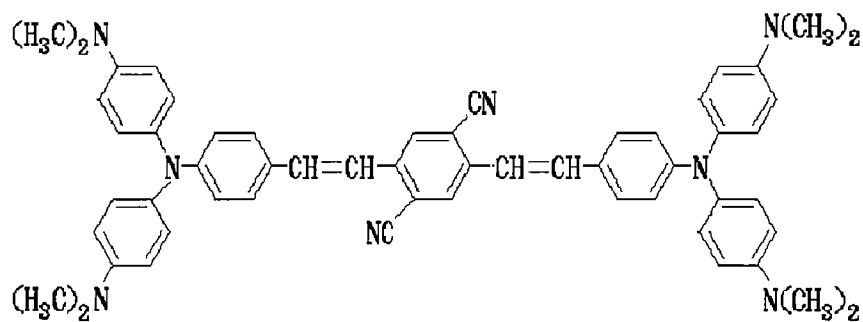
【化191】

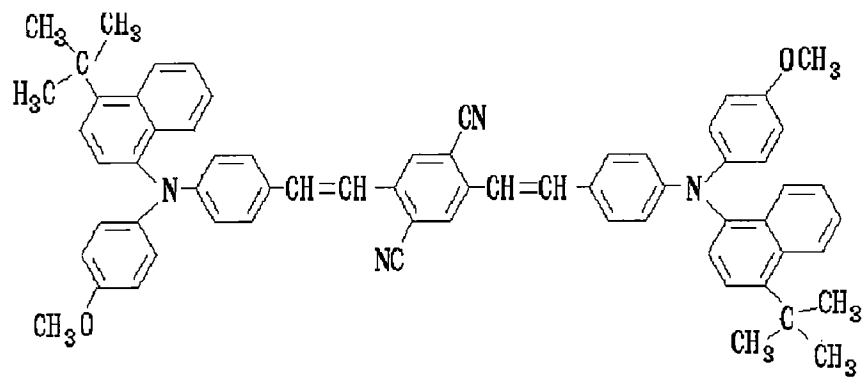
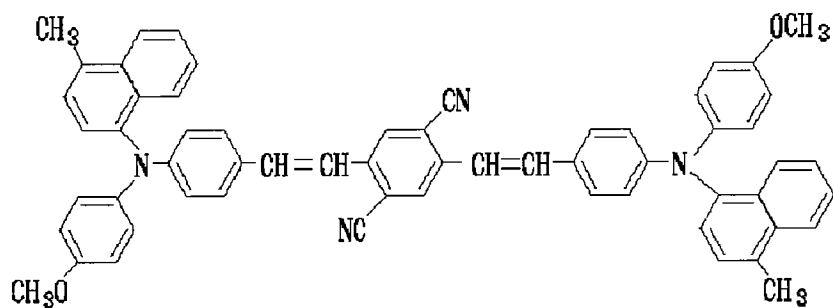
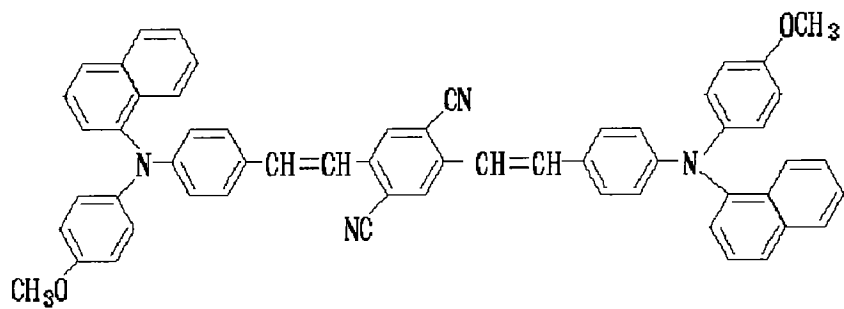
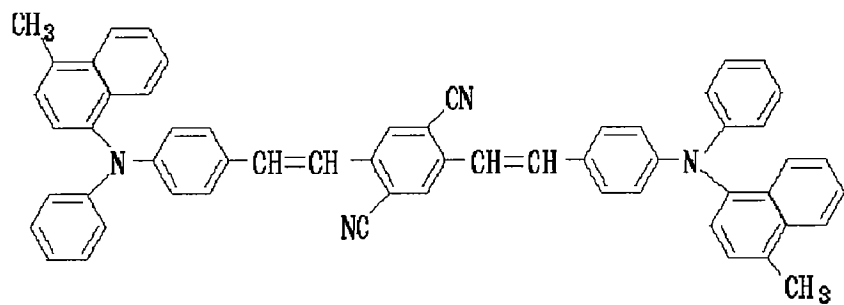
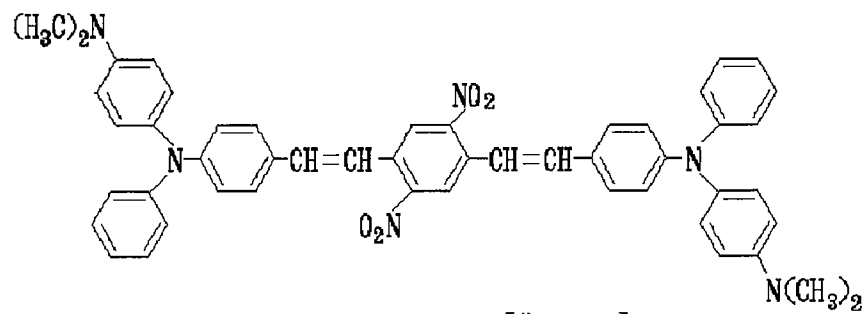


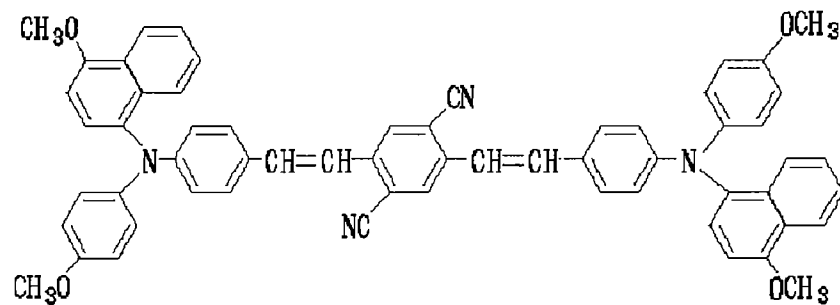


【0018】

【化192】

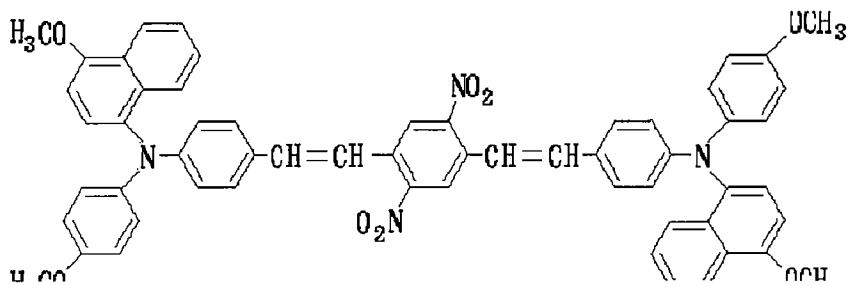
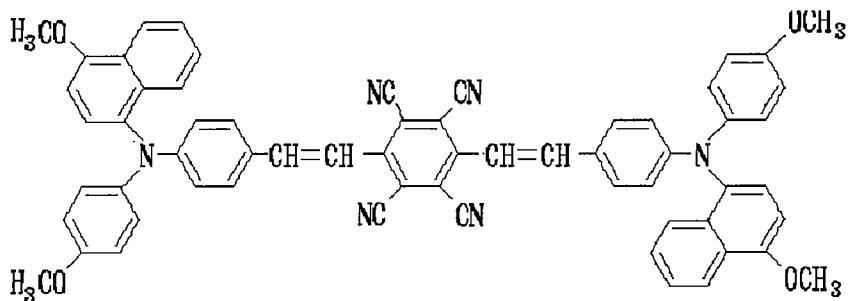
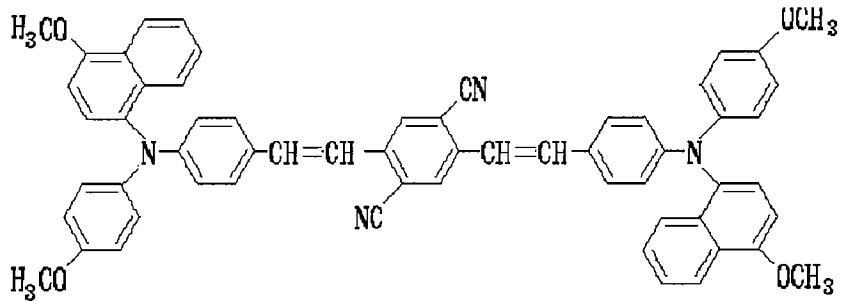
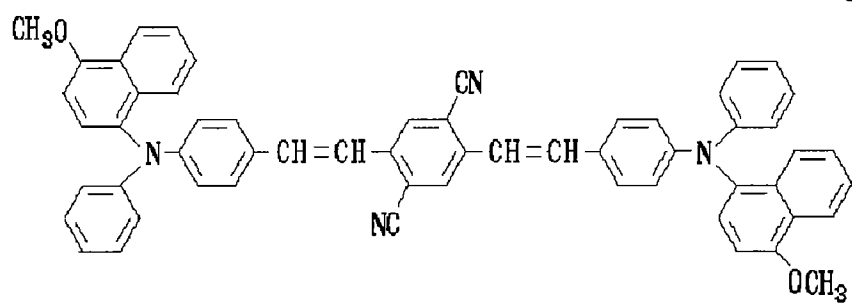
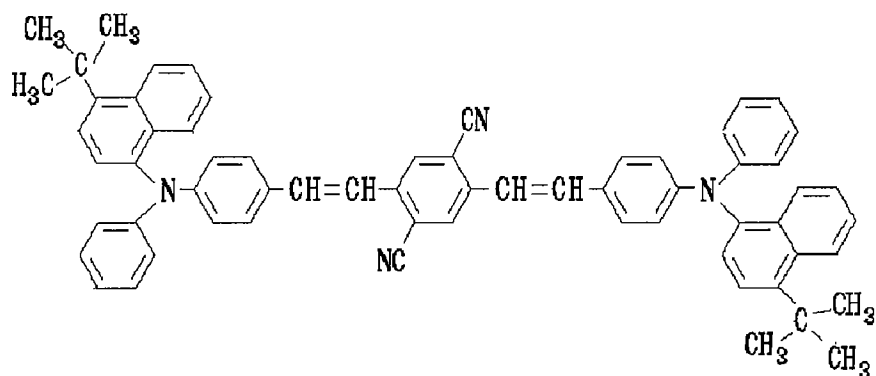


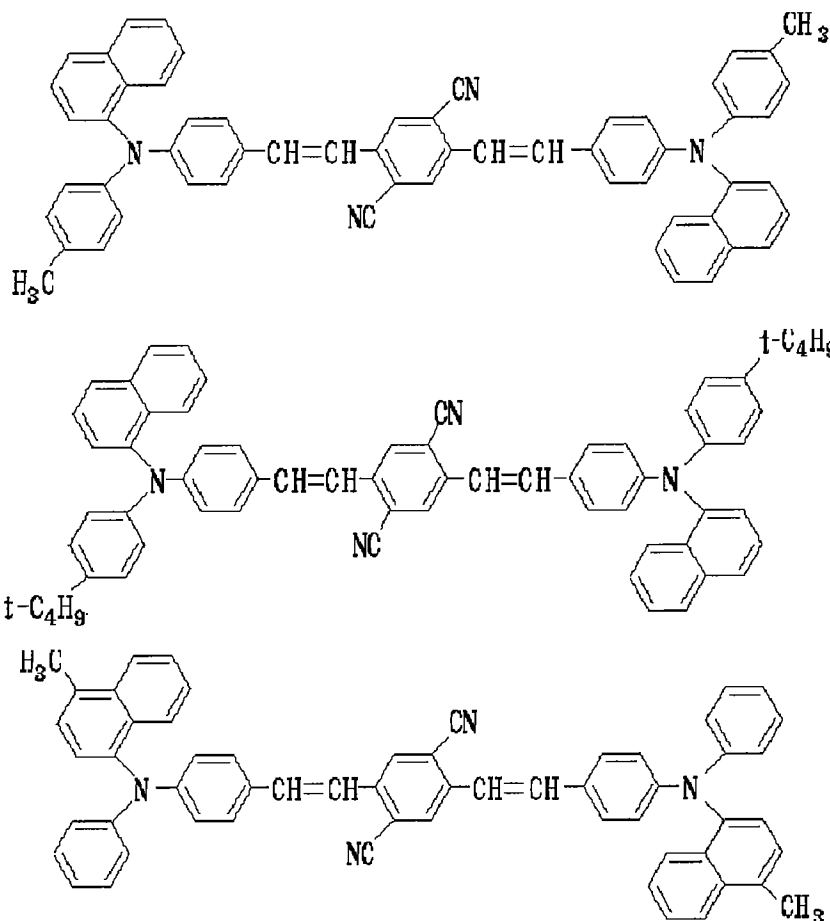




【0020】

【化194】





【0021】なお、上記した構造式(16)-8や(16)-9などの如く、*t*-ブチルなどといった嵩高い置換基の導入によって、次のような特性改善が図れる可能性がある。

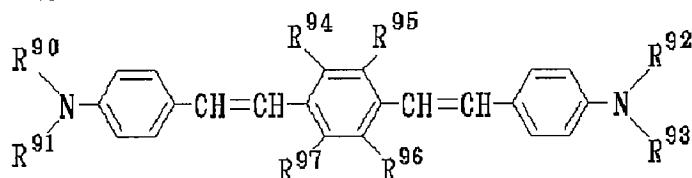
- ①強固な分子間相互作用を弱めることにより、安定なアモルファス膜を実現する。
- ②ホールのホッピングサイト距離を離し、ホール輸送性

をコントロールする。

【0022】また、本発明は、下記一般式〔XIX〕で示されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(以下、本発明の第2の化合物と称する。)も提供するものである。

【化195】

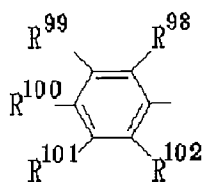
一般式〔XIX〕：



〔但し、前記一般式〔XIX〕において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式(40)で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化196】

一般式(40)：



(但し、前記一般式(40)において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R

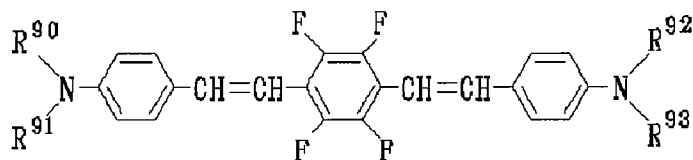
であって、それらの少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。〕

【0023】本発明の第2の化合物は、緑色～赤色の発光を示す有機発光材料として有効に利用することができ、また、高いガラス転移点及び融点を有する物質であり、電氣的、熱的或いは化学的な安定性に優れている上、非晶質でガラス状態を容易に形成し得るので、蒸着等を行なうこともできる。

X] で示されるものが好ましい。

【化197】

一般式 (XX) :

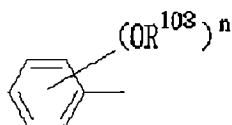


〔但し、前記一般式 (XX) において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は前記したものと同一である。〕

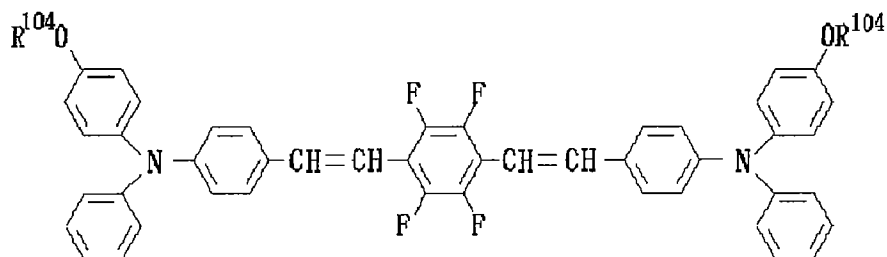
【0025】そして、前記 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は少なくとも一つが下記一般式 (41) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であるのがよい。

【化198】

一般式 (41) :



一般式 (42) :



〔但し、前記一般式 (42) において、 R^{104} は炭素数が 1～4 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。〕

【0027】本発明の第2の化合物は、下記構造式 (40) - 1、(40) - 2、(40) - 3、(40) -

〔但し、前記一般式 (41) において、 R^{103} は炭素数が 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0～5 の整数である。〕〕

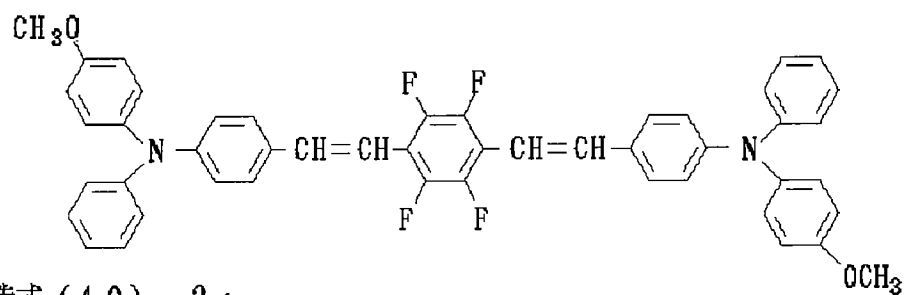
【0026】特に、下記一般式 (42) で表されるものがよい。

【化199】

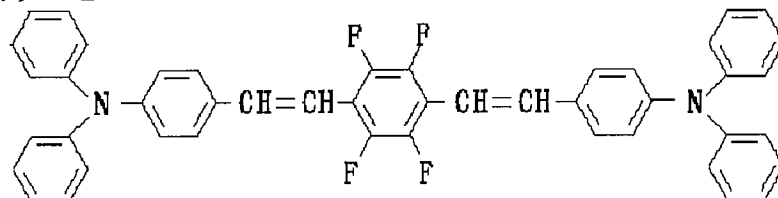
4、(40) - 5、(40) - 6 又は (40) - 7 で示されるものが具体的には例示される。

【化200】

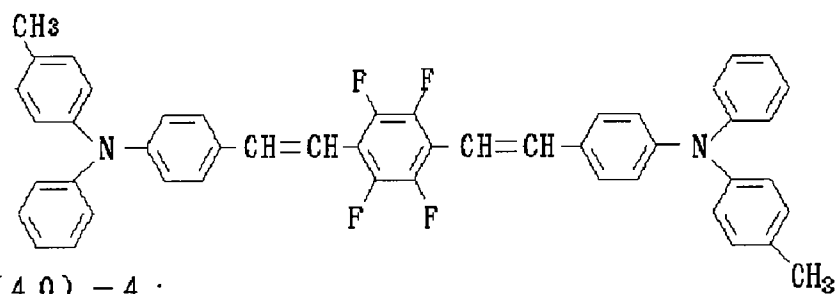
構造式(40)-1:



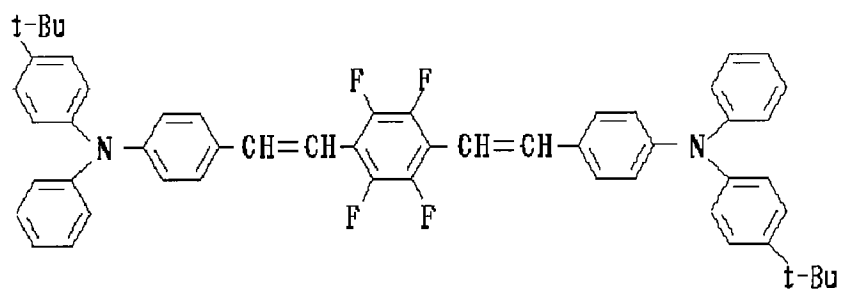
構造式(40)-2:



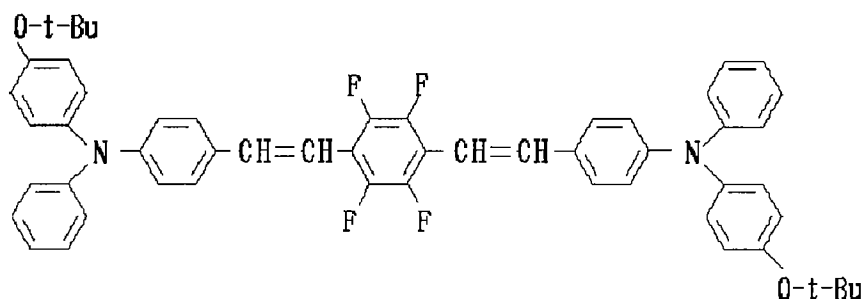
構造式(40)-3:



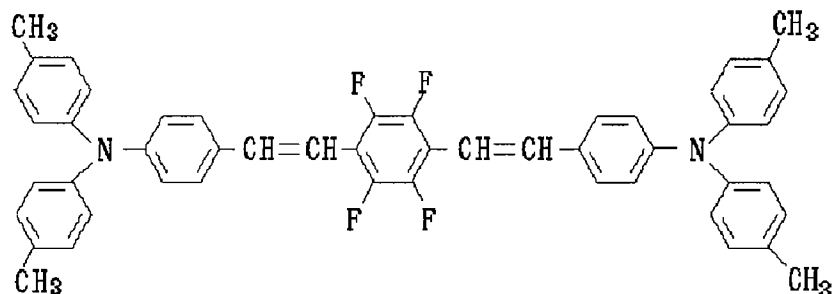
構造式(40)-4:



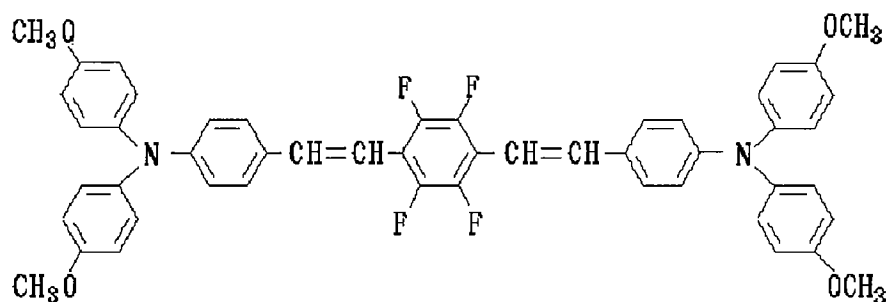
構造式(40)-5:



構造式(40)-6:



構造式(40)-7:

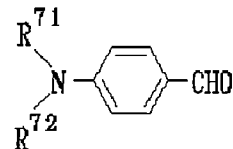


【0028】本発明はまた、本発明の第1の化合物を高効率に製造する方法として、下記一般式〔V〕又は〔VI〕で表される4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの少なくとも1種と；下記一般式〔VII〕で表されるジホスホン酸エステルまたは下記一般式〔VIII〕で表されるジホスホニウム塩と；を縮合させることによって、前記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物を得る、本発明の化合物の製造方法（以下、本発明の第1の製造方法と称する。）も提供するものである。

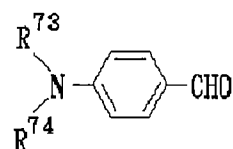
【0029】

【化201】

一般式〔V〕:



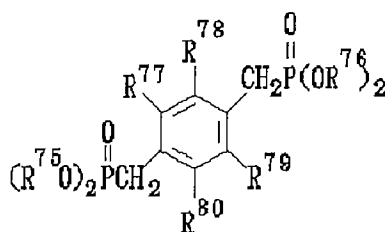
一般式〔VI〕:



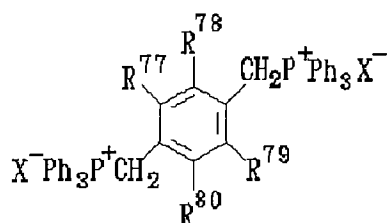
（但し、前記一般式〔V〕及び〔VI〕において、R⁷¹及びR⁷²はそれぞれ、前記R¹、R²、R¹⁴、R¹⁵、R²⁷、R²⁸、R⁴⁰又はR⁴¹に相当するアリール基であり、R⁷³及びR⁷⁴はそれぞれ、前記R³、R⁴、R¹⁶、R¹⁷、R²⁹、R³⁰、R⁴²又はR⁴³に相当するアリール基である。）

【化202】

一般式〔VII〕：

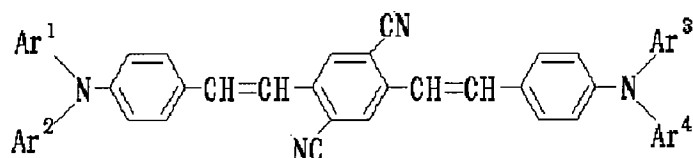


一般式〔VIII〕：



(但し、前記一般式〔VII〕及び〔VIII〕において、R

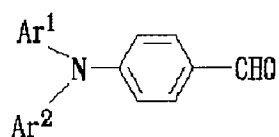
一般式〔I'〕：



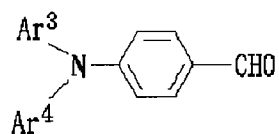
〔但し、前記一般式〔I'〕において、Ar¹、Ar²、Ar³及びAr⁴はそれぞれ、前記したものと同じである。〕、下記一般式(17)又は(18)で表される4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの少なくとも1種と；下記一般式(19)で表されるジホスホン酸エステルまたは下記一般式(20)で表されるジホスホニウム塩と；を縮合させる。

【化204】

一般式(17)：



一般式(18)：



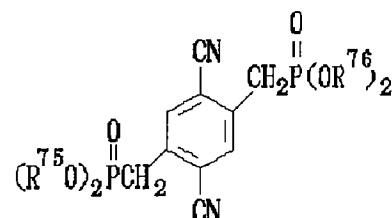
75及びR⁷⁶はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基、特に炭素数1～4の飽和炭化水素基（以下、同様）であり、R⁷⁷、R⁷⁸、R⁷⁹及びR⁸⁰はそれぞれ、前記R⁵、R⁶、R⁷、R⁸、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰、R²¹、R³¹、R³²、R³³、R³⁴、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶又はR⁴⁷に相当する基であり、Xはハロゲン原子である。）

【0030】本発明の第1の製造方法は、具体的には、前記縮合をウィッティヒーホーナー（Wittig-Horner）反応又はウィッティヒ（Wittig）反応によって行い、前記ジホスホン酸エステル及び／又は前記ジホスホニウム塩を溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドと縮合させるものである。

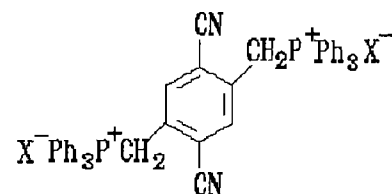
【0031】例えば下記一般式〔I'〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物を得るに際し

【化203】

一般式(19)：



一般式(20)：

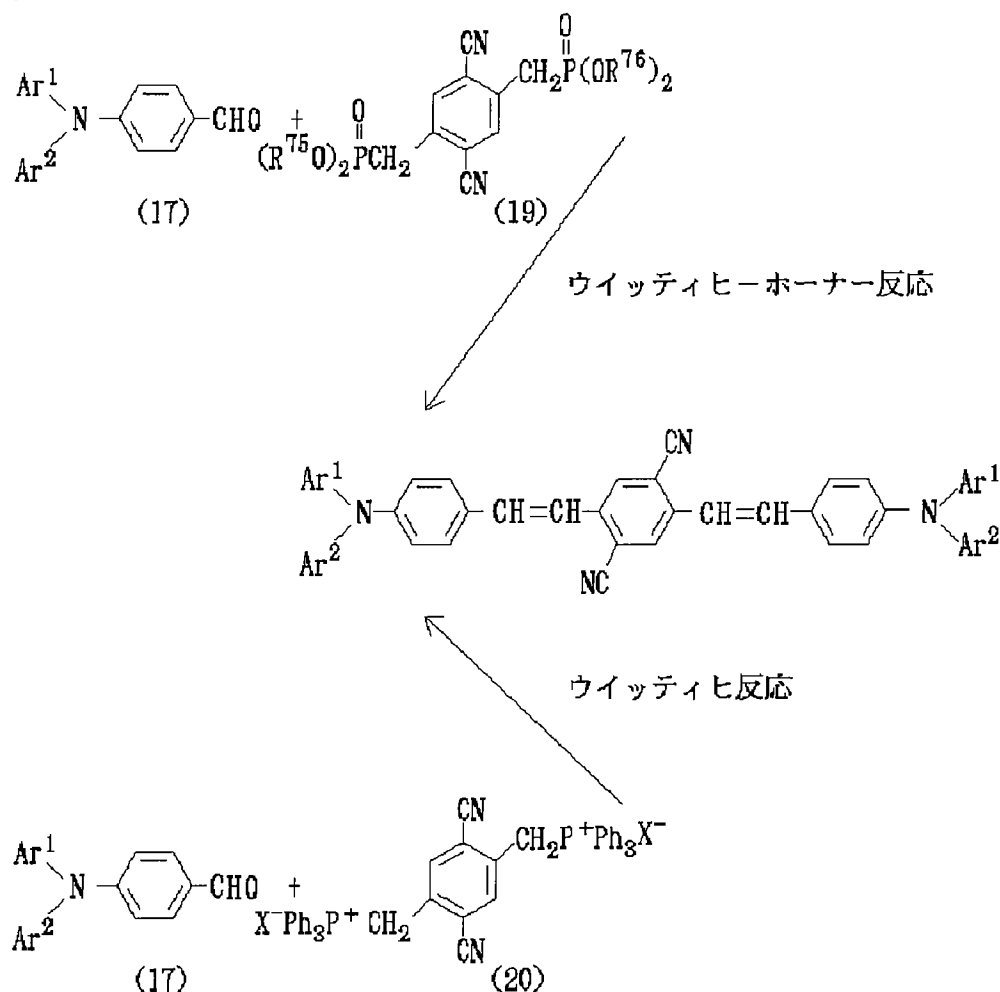


〔但し、前記一般式(17)、(18)、(19)及び(20)において、Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、R⁷⁵、R⁷⁶及びXは前記したものと同一である。〕

【0032】この縮合を反応スキームで示すと、例えば次の反応スキーム1のようになる。

【化205】

反応スキーム 1 :



【0033】この反応はまず、一般式(19)又は(20)の化合物を適当な溶媒中で塩基と処理することにより、カルボアニオンを発生させることから始まり、次にこのカルボアニオンが一般式(17)のアルデヒドと縮合することにより完結する。塩基と溶媒の組み合わせとしては、以下のものが考えられる。

【0034】水酸化ナトリウム/水、炭酸ナトリウム/水、炭酸カリウム/水、ナトリウムエトキシド/エタノールまたはジメチルホルムアミド、ナトリウムメトキシド/メタノール-ジエチルエーテル混合溶媒またはジメチルホルムアミド、トリエチルアミン/エタノールまたはジグライムまたはクロロホルムまたはニトロメタン、ピリジン/塩化メチレンまたはニトロメタン、1, 5-ジアザビシクロ[4.3.0] ノン-5-エン/ジメチルスルホキシド、カリウムt-ブトキシド/ジメチルスルホキシドまたはテトラヒドロフラン、ブチルリチウム/ジエチルエーテルまたはテトラヒドロフランまたはベンゼンまたはジメチルホルムアミド、フェニルリチウム/ジエチルエーテルまたはテトラヒドロフラン、ナトリウムアミド/アンモニア、水素化ナトリウム/ジメチルホルムアミドまたはテトラヒドロフラン、トリチルナトリウム/ジエチルエーテルまたはテトラヒドロフラン等。

℃)で進行し、選択的であるため、クロマトグラフィーによる目的物の精製が容易であることに加え、一般式〔I'〕の本発明の第1の化合物は結晶性が高いため、再結晶により純度を向上させることができる。再結晶の方法については、特に問わないが、アセトンに溶解し、ヘキサンを添加する方法が簡便であり、その後の溶媒除去も容易である。この反応は常温〜30℃、常圧で3〜24時間で行ってよい。

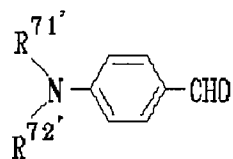
【0036】本発明の第1の製造方法によって、前記一般式(10)、(11)、(12)、(13)、(14)又は(15)で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物を得ることができ、具体的には、前記構造式(16)-1、(16)-2、(16)-3、(16)-4、(16)-5、(16)-6、(16)-7、(16)-8又は(16)-9で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物を得ることができる。

【0037】本発明はまた、本発明の第2の化合物を高効率に製造する方法として、下記一般式〔V'〕又は〔VI'〕で表される4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの少なくとも1種と；下記一般式〔VI I'〕で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式〔VIII'〕で表されるジホスホニウム塩と；を縮合させ

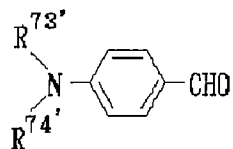
(以下、本発明の第2の製造方法と称する。)も提供するものである。

【化206】

一般式〔V'〕:



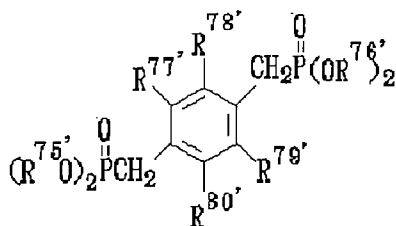
一般式〔VI'〕:



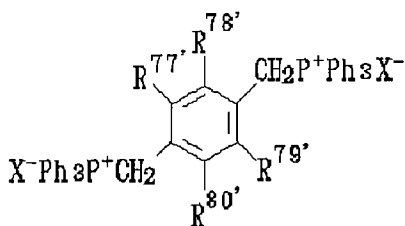
(但し、前記一般式〔V'〕及び〔VI'〕においてR71'及びR72'はそれぞれ、前記R90又はR91に相当するアリール基であり、R73'及びR74'はそれぞれ前記R92又はR93に相当するアリール基である。)

【化207】

一般式〔VII'〕:



一般式〔VIII'〕:



(但し、前記一般式〔VII'〕及び〔VIII'〕においてR75'及びR76'はそれぞれ、同一の又は異なる炭化水素基、特に炭素数1~4の飽和炭化水素基(以下、同様)であり、R77'、R78'、R79'及びR80'はそれぞれ、前記R94、R95、R96又はR97に相当する基であり、Xはハロゲン原子である。)

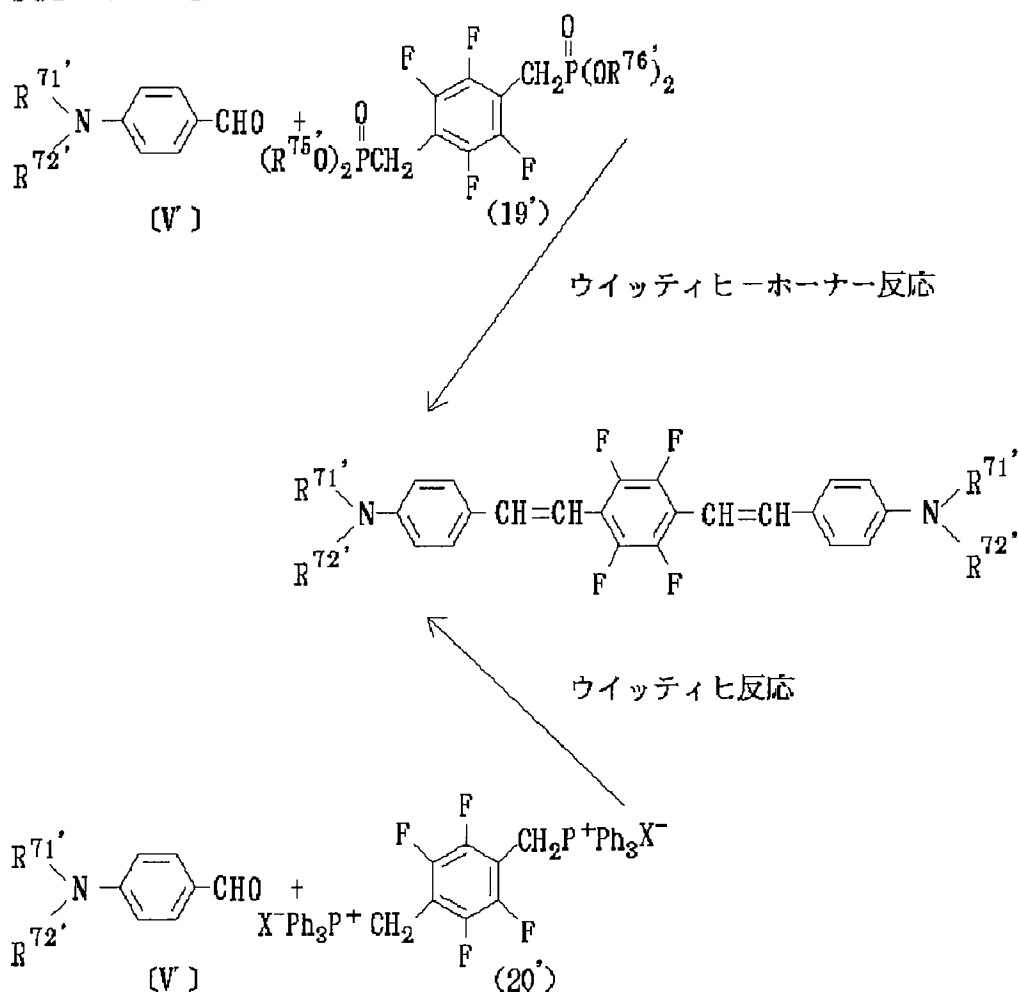
【0038】本発明の第2の製造方法は、具体的には、前記縮合をウィッティヒーホーナー(Wittig-Horner)反応又はウィッティヒ(Wittig)反応によって行い、前記ジホスホン酸エステル及び/又は前記ジホスホニウム塩を溶媒中で塩基で処理することによってカルボアニオンを生成させ、このカルボアニオンと前記4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドと縮合させるものである。

【0039】この縮合を反応スキームで示すと、例えば次の反応スキーム1'のようになる。

【0040】

【化208】

反応スキーム 1' :



【0041】この反応はまず、一般式(19')又は(20')の化合物を適当な溶媒中で塩基と処理することにより、カルボアニオンを発生させることから始まり、次にこのカルボアニオンが一般式[V']のアルデヒドと縮合することにより完結する。塩基と溶媒の組み合わせとしては、上記と同様のものが考えられる。

【0042】この反応は比較的低温(−30℃〜30℃)で進行し、選択的であるため、クロマトグラフィーによる目的物の精製が容易であることに加え、本発明の第2の化合物は結晶性が高いため、再結晶により純度を向上させることができる。再結晶の方法については、特に問わないが、アセトンに溶解し、ヘキサンを添加する方法が簡便であり、その後の溶媒留去も容易である。この反応は常温〜30℃、常圧で3〜24時間で行なうよい。

【0043】本発明の第2の製造方法によって、具体的には、前記構造式(40)−1、(40)−2、(40)−3、(40)−4、(40)−5、(40)−6又は(40)−7で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物を得ることができる。

【0044】本発明はまた、本発明の第1の化合物の合成中間体として好適な種々の化合物も提供するものであ

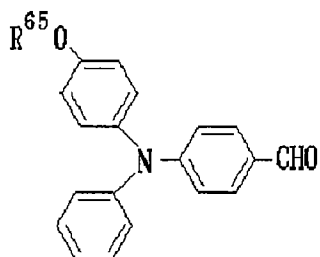
【0045】即ち、まず、前記一般式[V]又は[VI]で表され、前記一般式[I]、[II]、[III]又は[IV]で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられる4-(N,N-ジアルキルアミノ)ベンズアルデヒドである。

【0046】この合成中間体(以下、本発明の合成中間体1と称する。)は、前記一般式(17)又は(18)で表され、具体的には下記一般式(21)、(22)、(23)、(24)、(25)、(26)又は(26')で表され、下記構造式(27)−1、(27)−2、(27)−3、(27)−4、(27)−5、(27)−6、(27)−7、(27)−8、(27)−9、(27)−10、(27)−11、(27)−12、(27)−13、(27)−14、(27)−15として例示される。

【0047】

【化209】

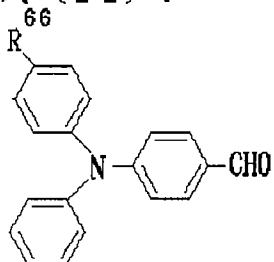
一般式 (21) :



(但し、前記一般式 (21) において、R⁶⁵は炭素数 2～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 2 1 0】

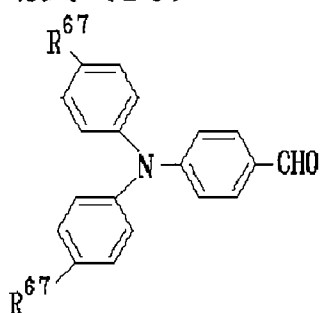
一般式 (22) :



(但し、前記一般式 (22) において、R⁶⁶は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 2 1 1】

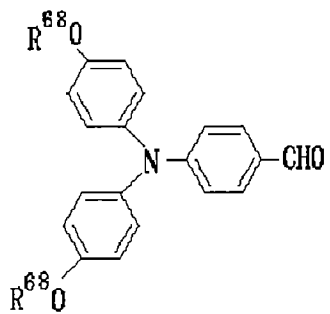
一般式 (23) :



(但し、前記一般式 (23) において、R⁶⁷は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 2 1 2】

一般式 (24) :

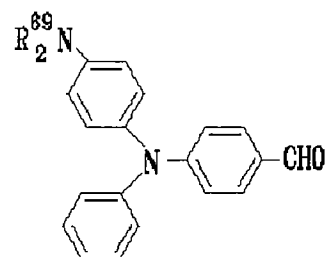


(但し、前記一般式 (24) において、R⁶⁸は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【0 0 4 8】

【化 2 1 3】

一般式 (25) :

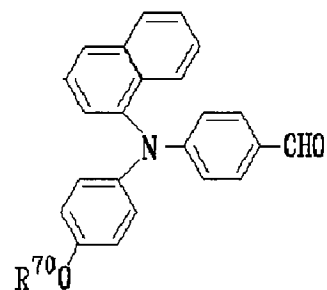


(但し、前記一般式 (25) において、R⁶⁹は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【0 0 4 9】

【化 2 1 4】

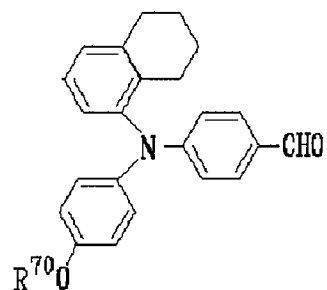
一般式 (26) :



(但し、前記一般式 (26) において、R⁷⁰は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 2 1 5】

一般式 (26') :

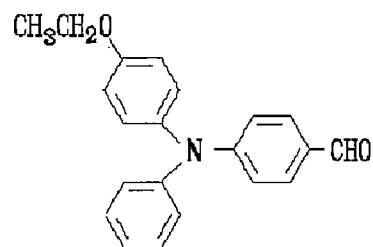


(但し、前記一般式 (26') において、R⁷⁰は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

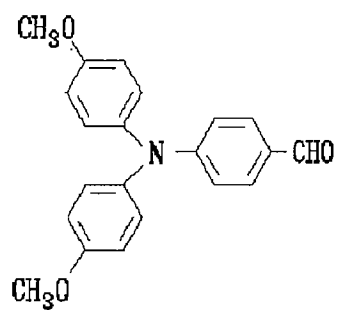
【0 0 5 0】

【化 2 1 6】

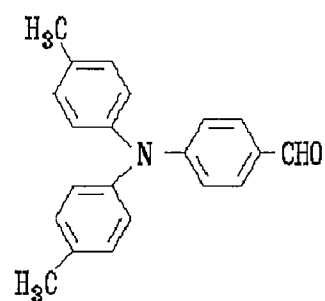
構造式 (27) - 1 :



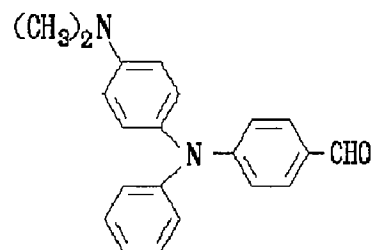
構造式 (27) - 2 :



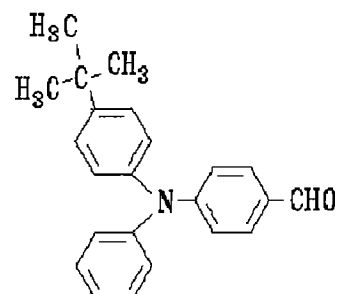
構造式 (27) - 7 :



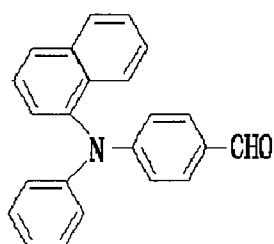
構造式 (27) - 3 :



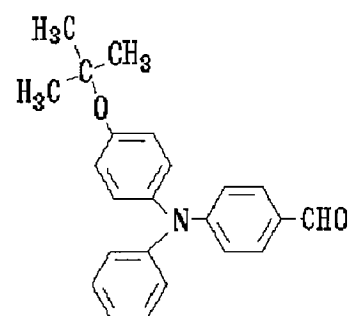
構造式 (27) - 8 :



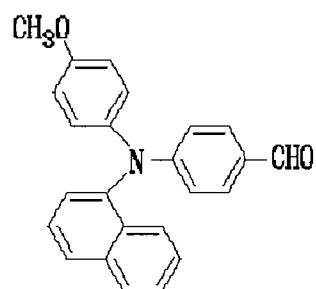
構造式 (27) - 4 :



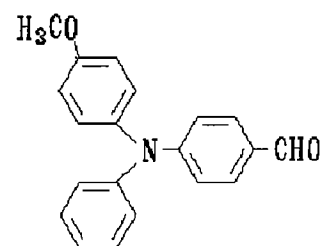
構造式 (27) - 9 :



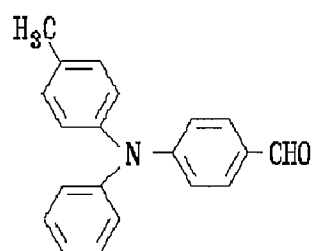
構造式 (27) - 5 :



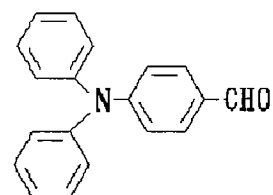
構造式 (27) - 10 :



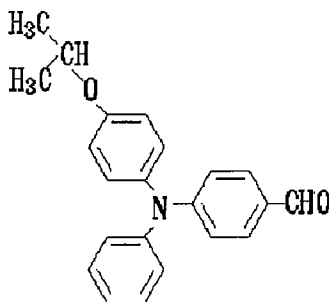
構造式 (27) - 6 :



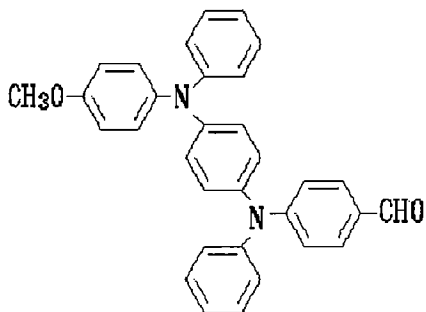
構造式 (27) - 11 :



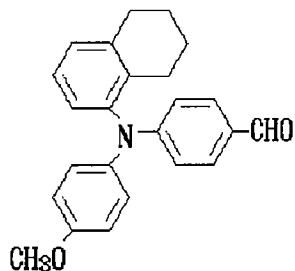
構造式 (27) - 12 :



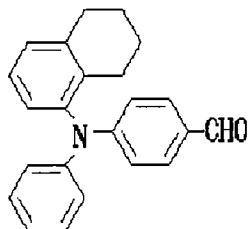
構造式 (27) - 13 :



構造式 (27) - 14 :



構造式 (27) - 15 :



【0051】本発明はまた、本発明の第2の化合物の合成中間体として好適な種々の化合物も提供するものである。

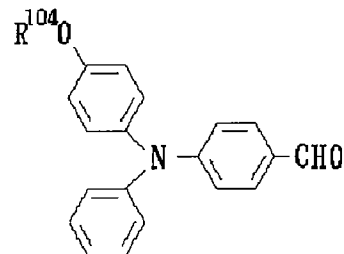
【0052】即ち、前記一般式〔V'〕又は〔VI'〕で表され、前記一般式〔XIX〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられる4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドで

【0053】この合成中間体(以下、本発明の合成中間体1'と称する。)は、具体的には下記一般式(43)で表され、下記構造式(41)-1、(41)-2、(41)-3、(41)-4、(41)-5、(41)-6又は(41)-7として例示される。

【0054】

【化217】

一般式(43) :

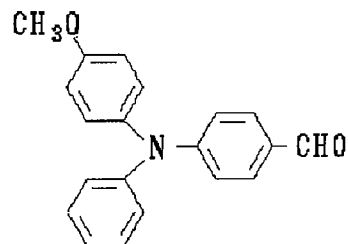


(但し、前記一般式(43)において、R¹⁰⁴は炭素数が1~6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

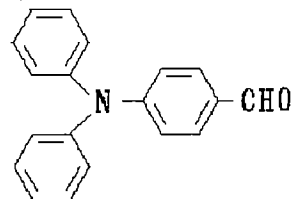
【0055】

【化218】

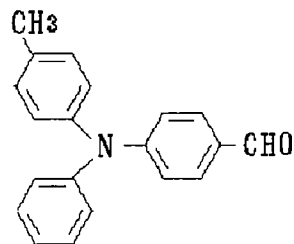
構造式(41)-1 :



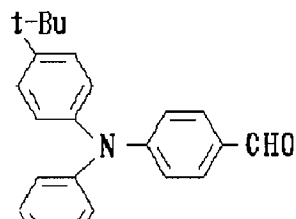
構造式(41)-2 :



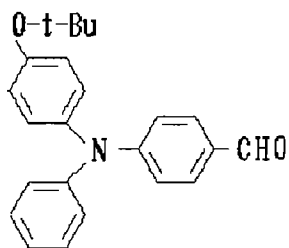
構造式(41)-3 :



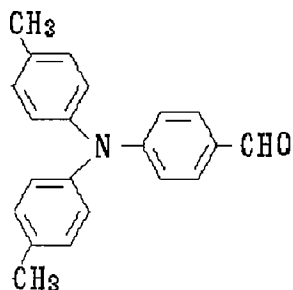
構造式(41)-4 :



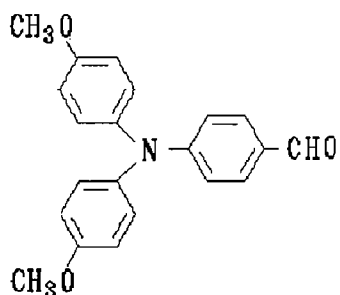
構造式 (41) - 5 :



構造式 (41) - 6 :



構造式 (41) - 7 :



【0056】本発明の合成中間体1又は1'は、その前駆体としての合成中間体から次のようにして導くことができる。

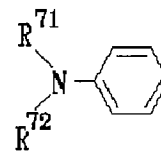
【0057】下記一般式〔IX〕又は〔X〕、或いは下記一般式〔IX'〕又は〔X'〕で表され、前記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられるトリアリールアミン(以下、本発明の合成中間体2と称する。)、或いは前記一般式〔XIX〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられるトリアリールアミン(以下、本発明の合成中間体2'と称する。)をジメチルホルムアミドとオキシ塩化リンとの付加体によってホルミル化し、前記ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体1又は1'としての前記一般式〔V〕又は〔VI〕、或いは〔V'〕又は〔VI'〕で表される4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドを得る。このホルミル化反応は、ジメチルホルムアミド中で室温(20℃)～

る。

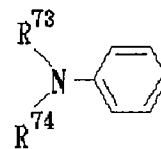
【0058】

【化219】

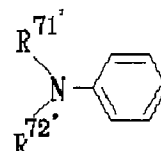
一般式〔IX〕 :



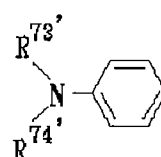
一般式〔X〕 :



一般式〔IX'〕 :



一般式〔X'〕 :

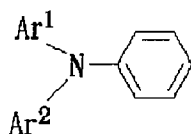


(但し、前記一般式〔IX〕及び〔X〕、〔IX'〕及び〔X'〕において、R71及びR72はそれぞれ、前記R1、R2、R14、R15、R27、R28、R40又はR41に相当するアリール基であり、R71'及びR72'はそれぞれ、前記R90又はR91に相当するアリール基であり、R73及びR74はそれぞれ、前記R3、R4、R16、R17、R29、R30、R42又はR43に相当するアリール基であり、R73'及びR74'はそれぞれ、前記R92又はR93に相当するアリール基である。)

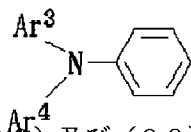
【0059】そして、上記の本発明の合成中間体2又は2'は、前記一般式〔IX〕又は〔X〕、或いは〔IX'〕又は〔X'〕で表され、具体的には、下記一般式(28)又は(29)で表され、更に具体的には下記一般式(30)、(31)、(32)、(33)、(34)又は(35)で表され、下記構造式(36)-1、(36)-2、(36)-3、(36)-4、(36)-5、(36)-6、(36)-7、(36)-8、(36)-9、(36)-10又は(36)-11として例示される。

【化220】

一般式 (28) :



一般式 (29) :

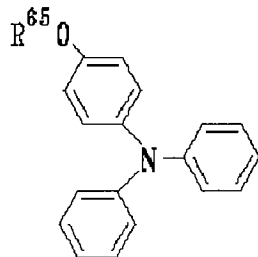


〔但し、前記一般式 (28) 及び (29) において、Ar¹、Ar²、Ar³ 及び Ar⁴ はそれぞれ、前記したものと同一である。〕

【0060】

【化221】

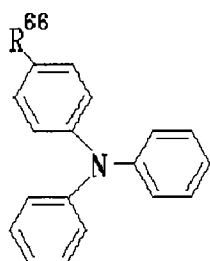
一般式 (30) :



〔但し、前記一般式 (30) において、R⁶⁵は炭素数2～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。〕

【化222】

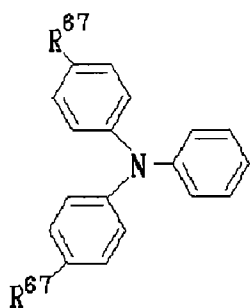
一般式 (31) :



〔但し、前記一般式 (31) において、R⁶⁶は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。〕

【化223】

一般式 (32) :

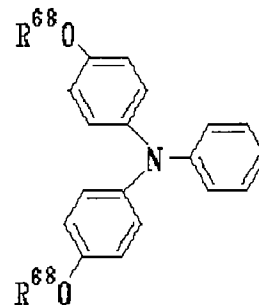


〔但し、前記一般式 (32) において、R⁶⁷は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。〕

【0061】

【化224】

一般式 (33) :

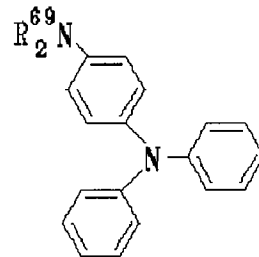


〔但し、前記一般式 (33) において、R⁶⁸は炭素数1～4の飽和又は不飽和の炭化水素基である。〕

【0062】

【化225】

一般式 (34) :

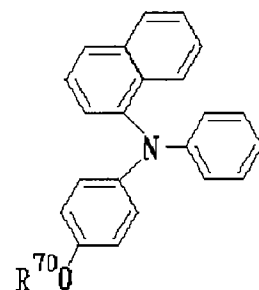


〔但し、前記一般式 (34) において、R⁶⁹は炭素数1～4の飽和又は不飽和の炭化水素基である。〕

【0063】

【化226】

一般式 (35) :

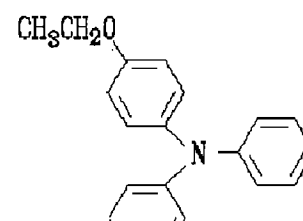


〔但し、前記一般式 (35) において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。〕

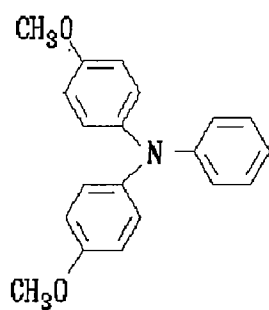
【0064】

【化227】

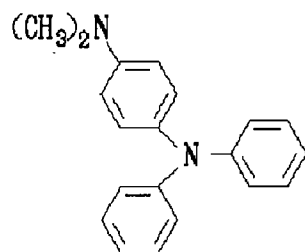
構造式 (36) - 1 :



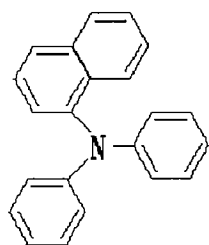
構造式 (36) - 2 :



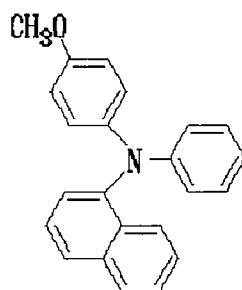
構造式 (36) - 3 :



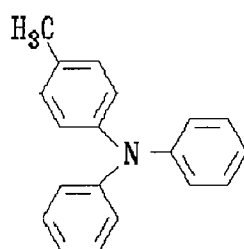
構造式 (36) - 4 :



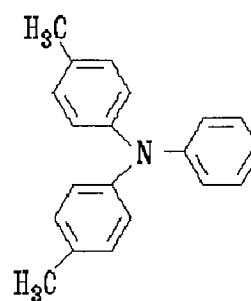
構造式 (36) - 5 :



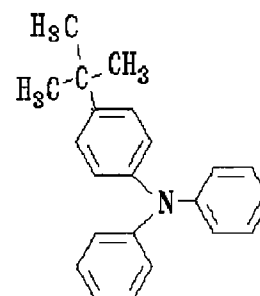
構造式 (36) - 6 :



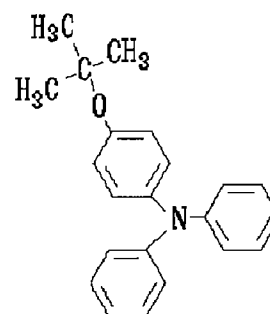
構造式 (36) - 7 :



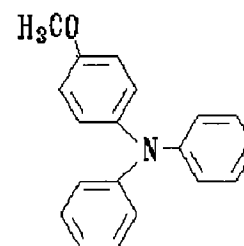
構造式 (36) - 8 :



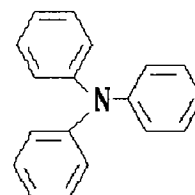
構造式 (36) - 9 :



構造式 (36) - 10 :



構造式 (36) - 11 :



は、次のようにして合成することができる。

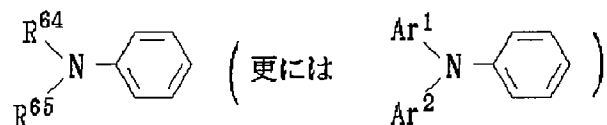
【0066】下記一般式〔XI〕又は〔XI'〕で表されるジアリールアミンと下記一般式〔XII〕又は〔XII'〕で表されるハロゲン化ベンゼンとを触媒及び塩基の存在下でカップリングさせるか、或いは、下記一般式〔XIII〕又は〔XIII'〕で表されるジアリールアミンと下記一般

式〔XIV〕又は〔XIV'〕で表されるハロゲン化アリール化合物とを触媒及び塩基の存在下でカップリングさせ、合成中間体2又は2'としてのトリアリールアミンを得る。

【0067】

【化228】

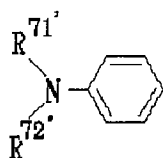
一般式〔IX〕：



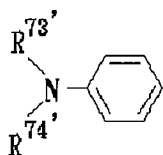
一般式〔X〕：



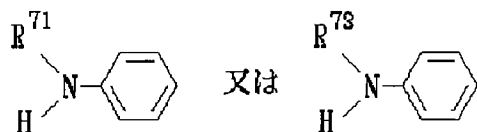
一般式〔IX'〕：



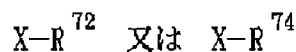
一般式〔X'〕：



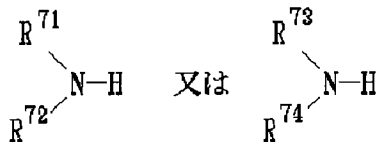
一般式〔XIII〕：



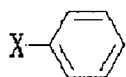
一般式〔XIV〕：



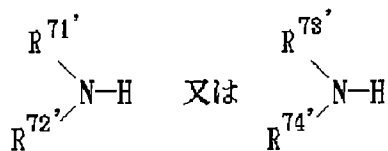
一般式〔XI〕：



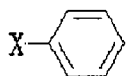
一般式〔XII〕：



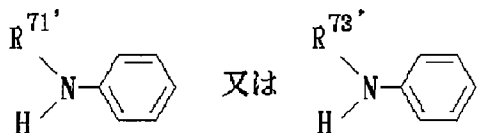
一般式〔XI'〕：



一般式〔XII'〕：



一般式〔XIII'〕：



一般式〔XIV'〕：



(但し、前記一般式〔IX〕及び〔X〕、〔IX'〕及び〔X'〕、〔XI〕及び〔XII〕、〔XI'〕及び〔XII'〕、〔XIII〕及び〔XIV〕、〔XIII'〕及び〔XIV'〕において、 R^{71} 及び R^{72} はそれぞれ、前記 R^1 、 R^2 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{40} 又は R^{41} に相当するアリール基であり、 $R^{71'}$ 及び $R^{72'}$ はそれぞれ、前記 R^{90} 又は R^{91} に相当するアリール基であり、 R^{73} 及び R^{74} はそれぞれ、前記 R^3 、 R^4 、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{42} 又は R^{43} に相当するアリール基であり、 $R^{73'}$ 及び $R^{74'}$ はそれぞれ、前記 R^{92} 又は R^{93} に相当するアリール基であり、 X はハロゲン原子である。)

反応で用いられる前記触媒とは、Cu、CuX、CuX₂、CuO、Pd(CH₃COO)₂、Pd(PR₃)₄（Rはフェニル基またはアルキル基）等であり、また前記塩基とは、K₂CO₃、Ca₂CO₃、NaOH、BuONa、PrONa、C₂H₅ONa、CH₃ONa等である。また、この反応は、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ニトロベンゼン、ジクロロベンゼン、キシレン等の溶媒中で、反応温度は100～200℃、常圧で反応時間は2～48時間としてよい。

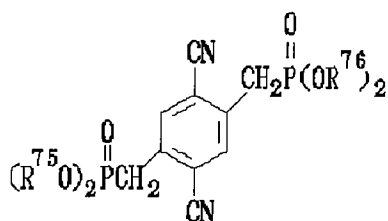
【0069】本発明はまた、本発明の第1及び第2の化合物の合成中間体として、前記一般式〔VII〕又は〔VI I'〕で表されるジホスホン酸エステルまたは前記一般式〔VIII〕又は〔VIII'〕で表されるジホスホニウム塩（以下、本発明の合成中間体3と称する。）も提供するものである。

【0070】この合成中間体3は、具体的には下記一般式（19）又は（20）、或いは下記一般式（19'）又は（20'）で表される。

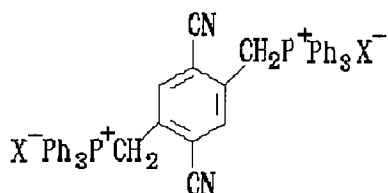
【0071】

【化229】

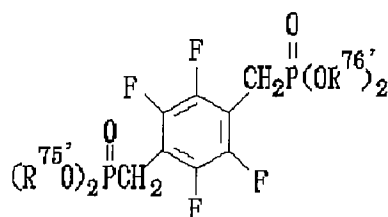
一般式（19）：



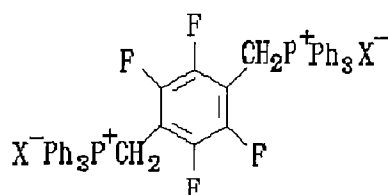
一般式（20）：



一般式（19'）：



一般式（20'）：



（但し、前記一般式（19）、（20）、（19'）、（20'）において、R⁷⁵、R⁷⁶、R^{75'}、R^{76'}は前記したものと同じである。）

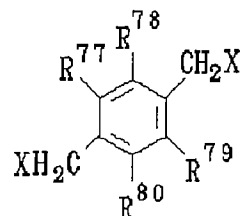
【0072】本発明の合成中間体3は、その前駆体としての合成中間体から次のようにして導くことができる。

【0073】下記一般式〔XV〕又は〔XV'〕で表されるハロゲン化アリール化合物と、下記一般式〔XVI〕で表される亜リン酸トリアルキル又はトリフェニルホスフィン（PPh₃）とを反応させることによって、前記一般式〔VII〕又は〔VIII〕、〔VII'〕又は〔VIII'〕で表されるジホスホン酸エステル又はジホスホニウム塩を合成中間体3として得る。この反応は、無溶媒または過剰の亜リン酸トリアルキルまたはキシレン等の溶媒中で反応温度120～160℃、常圧で反応時間30分～12時間としてよい。

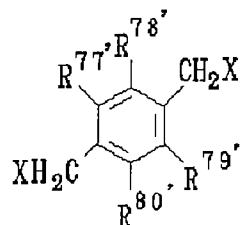
【0074】

【化230】

一般式〔XV〕：



一般式〔XV'〕：



R⁷⁷、R⁷⁸、R⁷⁹及びR⁸⁰はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子であり、R^{77'}、R^{78'}、R^{79'}及びR^{80'}はそれぞれ、互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子であり、Xはハロゲン原子である。）

【0075】一般式〔XVI〕：

P(OR⁸¹)₃ 又は P(OR⁸²)₃

（但し、前記一般式〔XVI〕において、R⁸¹及びR⁸²はそれぞれ、同一の又は異なる炭化水素基、特に炭素数1～4の飽和又は不飽和の炭化水素基であって、前記R⁷⁵又はR⁷⁶、R^{75'}又はR^{76'}に相当する基である。）

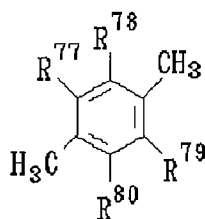
【0076】本発明はまた、合成中間体3を得るための合成中間体として、前記一般式〔XV〕又は〔XV'〕で表されるハロゲン化アリール化合物（以下、本発明の合成中間体4と称する。）も提供するものである。

【0077】本発明の合成中間体4は、下記一般式〔XVII〕又は〔XVII'〕で表されるキシレン化合物と、下記一般式〔XVIII〕で表されるN-ハロゲン化スクシンイミドとを光照射下に反応させることによって得ることができる。例えば、四塩化炭素、クロロホルム、ベンゼン等の溶媒中、高圧水銀灯、低圧水銀灯、キセノン灯、ハロゲン灯等の光源を用いて100～500Wの光の照射下に、20～60℃の温度、常圧で30分～48時間の反応時間で反応させる。

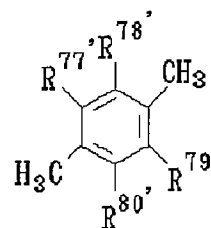
【0078】

【化231】

一般式〔XVII〕：



一般式〔XVII'〕：

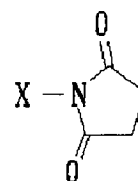


（但し、前記一般式〔XVII〕及び〔XVII'〕において、R⁷⁷、R⁷⁸、R⁷⁹及びR⁸⁰はそれぞれ、同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子であり、R^{77'}、R^{78'}、R^{79'}及びR^{80'}はそれぞれ、互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。）

【0079】

【化232】

一般式〔XVIII〕：



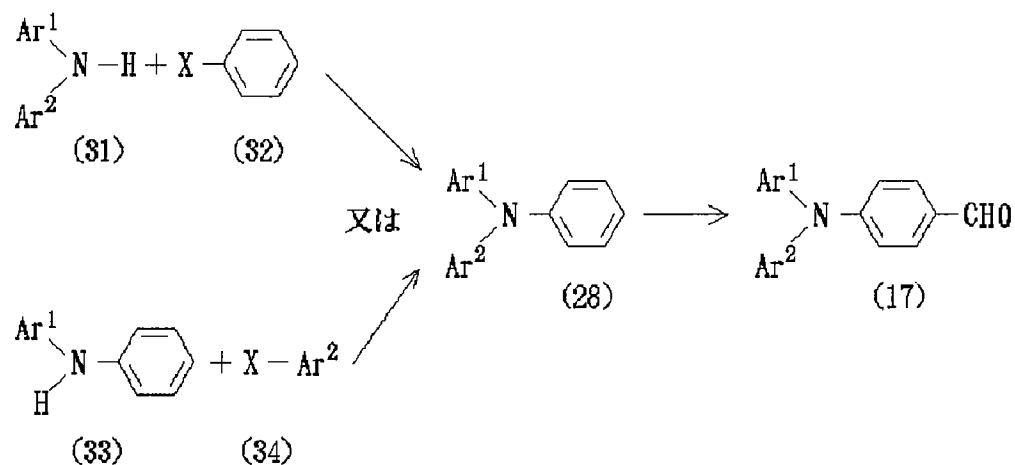
（但し、前記一般式〔XVIII〕において、Xはハロゲン原子である。）

【0080】以上に述べた各合成中間体1～4をそれぞれ得る反応は、次の反応スキーム2及び反応スキーム3又は3'で示すことができる。

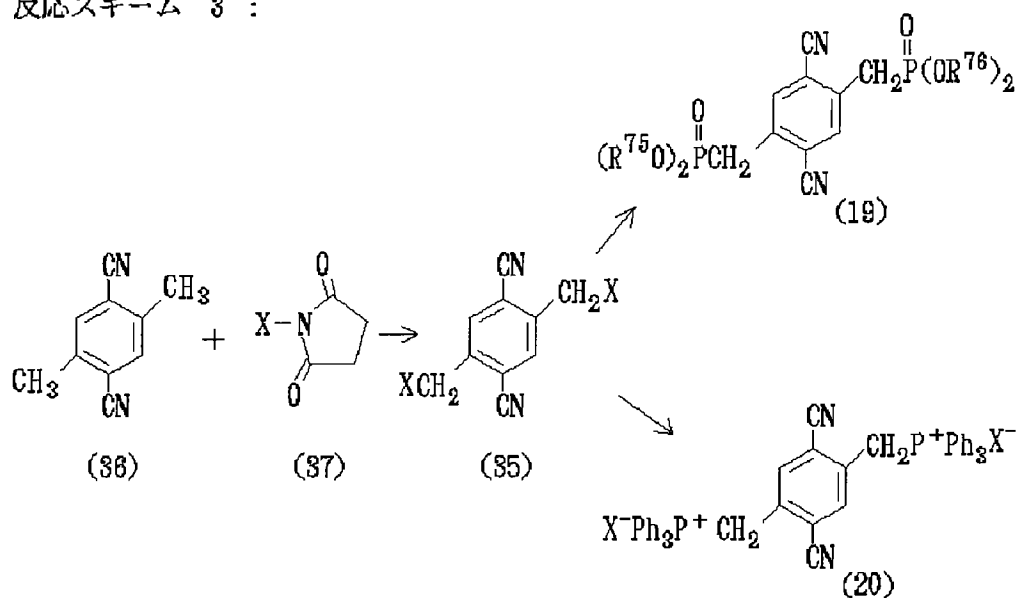
【0081】

【化233】

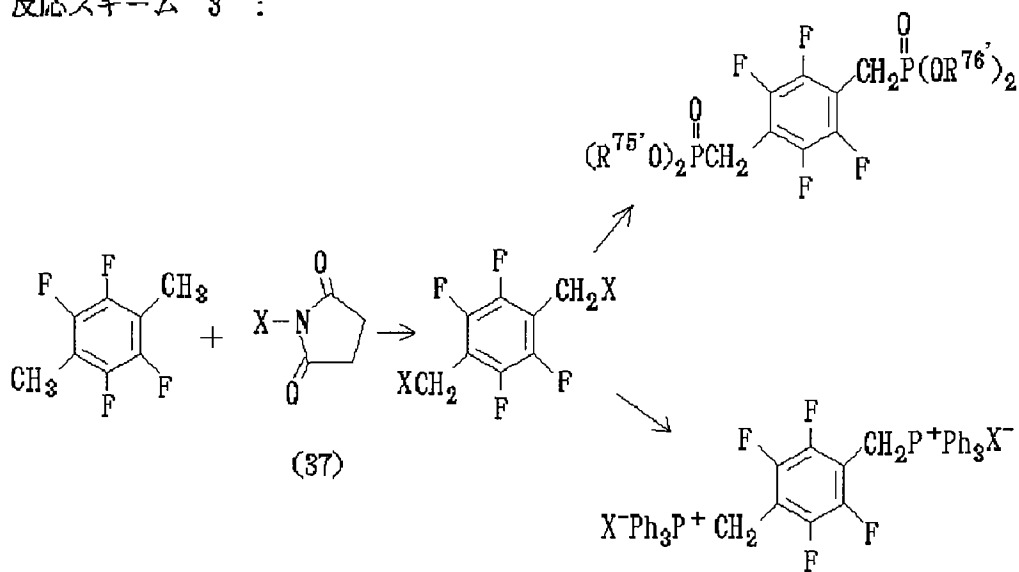
反応スキーム 2 :



反応スキーム 3 :



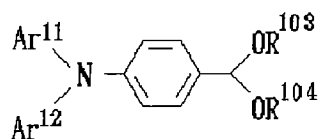
反応スキーム 3' :



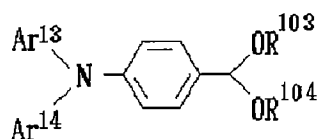
4)、(45)又は(46)で表されるアセタール化合物(以下、本発明の合成中間体5と称する。)である。

【化234】

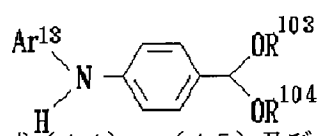
一般式(44):



一般式(45):



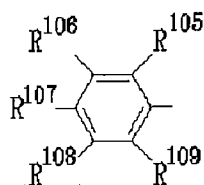
一般式(46):



〔但し、前記一般式(44)、(45)及び(46)において、Ar¹¹、Ar¹²、Ar¹³及びAr¹⁴は、互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(47)で表されるアリール基であり

【化235】

一般式(47):

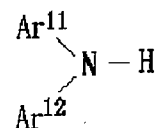


(但し、前記一般式(47)において、R¹⁰⁵、R¹⁰⁶、R¹⁰⁷、R¹⁰⁸及びR¹⁰⁹は、互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、炭化水素基、炭化水素オキシ基又は炭化水素アミノ基から選ばれた基である。)、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R¹⁰³とR¹⁰⁴が炭素鎖によってつながれた構造をとってもよい。]

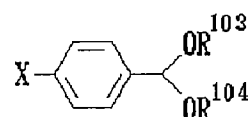
【0084】本発明の合成中間体5を得るに際し、前記一般式(44)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(48)で表されるアミン化合物と下記一般式(49)で表されるアセタール化合物とをカップリングさせ

【化236】

一般式(48):



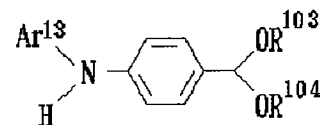
一般式(49):



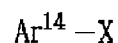
(但し、前記一般式(48)及び(49)において、Ar¹¹、Ar¹²、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は前記したものと同じであり、Xはハロゲン原子である。)、前記一般式(45)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(49')で表されるアセタール化合物と下記一般式(50)で表されるアリール化合物とをカップリングさせ

【化237】

一般式(49'):



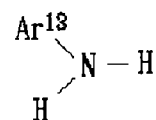
一般式(50):



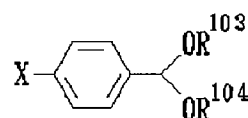
(但し、前記一般式(49')及び(50)において、Ar¹³、Ar¹⁴、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は前記したものと同じであり、Xはハロゲン原子である。)、前記一般式(46)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(51)で表されるアミン化合物と下記一般式(52)で表されるアセタール化合物とをカップリングさせるのがよい。

【化238】

一般式(51):



一般式(52):



(但し、前記一般式(51)及び(52)において、A

Xはハロゲン原子である。)

【0085】前記カップリング時に用いる前記触媒として、下記のPd(O)-ホスフィン錯体が活性種として働くのがよい。

Pd(O)-ホスフィン錯体

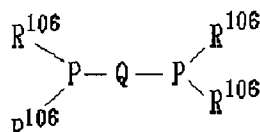
(但し、Pd(O)はPd(O)、Pd(I)、Pd(II)の試薬として添加されてもよく、ホスフィンは下記一般式(53)又は(54)で表される3級ホスフィンである。

【化239】

一般式(53)：

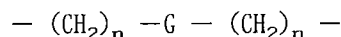


一般式(54)：

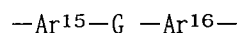


(但し、前記一般式(53)及び(54)において、R¹⁰⁵及びR¹⁰⁶は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、Qは炭化水素基、又は下記一般式(55)又は(56)で表されるような橋かけ構造をとってもよい。

一般式(55)：



一般式(56)：



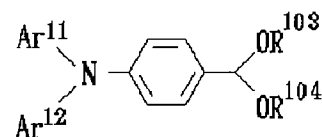
(但し、前記一般式(55)及び(56)において、Gは酸素原子、硫黄原子、アミノ基、炭化水素基又は金属原子であり、Ar¹⁵及びAr¹⁶は置換基を有してもよいアリール基である。))

【0086】そして、本発明の合成中間体5、即ち、下記一般式(44)、(45)又は(46)で表されるアセタール化合物を、ケトン溶媒中、酸触媒又は塩基触媒の存在下でアセタール交換させることにより、下記一般式(57)、(58)又は(59)で表される4-

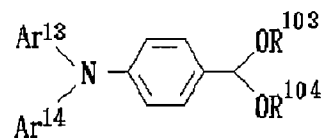
(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド化合物を得ることが有利である。

【化240】

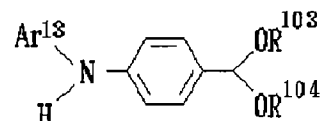
一般式(44)：



一般式(45)：



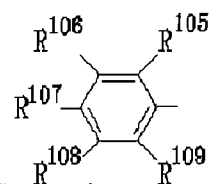
一般式(46)：



(但し、前記一般式(44)、(45)及び(46)において、Ar¹¹、Ar¹²、Ar¹³及びAr¹⁴は、互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(47)で表されるアリール基であり、

【化241】

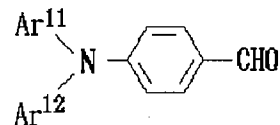
一般式(47)：



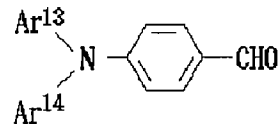
(但し、前記一般式(47)において、R¹⁰⁵、R¹⁰⁶、R¹⁰⁷及びR¹⁰⁸は、互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、炭化水素基、炭化水素オキシ基又は炭化水素アミノ基から選ばれた基である。)、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R¹⁰³とR¹⁰⁴とが炭素鎖によってつながれた構造をとってもよい。]

【化242】

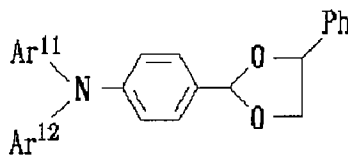
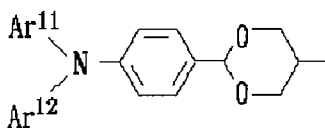
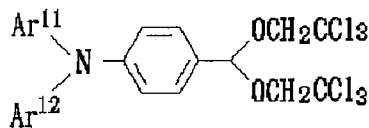
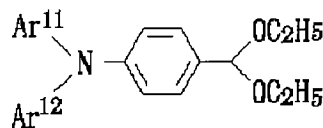
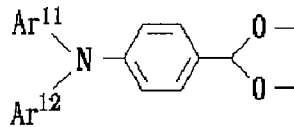
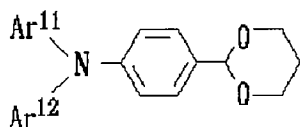
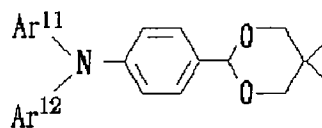
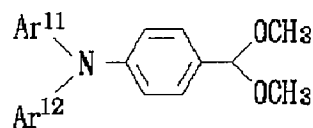
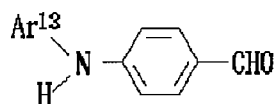
一般式(57)：



一般式(58)：



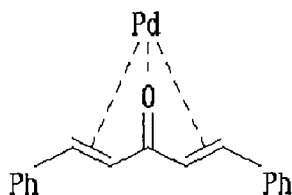
一般式 (59) :



【0088】また、上記の酸触媒と溶媒の組み合わせとして、硫酸／メタノール、塩酸／メタノール、 DCC-SnCl_4 ／しゅう酸／アルコール、トリフルオロ酢酸／ジメトキシメタン／ニトロメタン、p-トルエンスルホン酸／ジメトキシメタン／メタノール、塩酸／テトラメトキシシラン／メタノール、p-トルエンスルホン酸／アセトン、トリフルオロ酢酸／クロロフォルム／水、テトラクロロチタン／沃化リチウム／ジエチルエーテル、酢酸／水、蟻酸／ペンタン、酢酸／亜鉛-銀／テトラヒドロフラン、p-トルエンスルホン酸ピリジニウム

パラジウム(0) のソース

＝パラジウム(0) ビス (ジベンジリデンアセトン)



【0090】パラジウムは反応系中で $\text{Pd}(0)$ になっていればよく、 $\text{Pd}(\text{CH}_3\text{COO})_2 - \text{PPh}_4$ の系では、 PPh_4 により $\text{Pd}(II)$ が還元されて、 $\text{Pd}(0)$ が発生していると思われる (但し、ホスフィン

(但し、前記一般式 (57)、(58) 及び (59) において、 Ar^{11} 、 Ar^{12} 、 Ar^{13} 及び Ar^{14} は前記したものと同じである。)

【0087】ここで、例えば上記の一般式 (44) の化合物としては、具体的には以下のものが挙げられる。

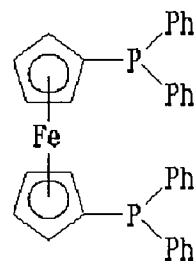
【化243】

／アセトン-水、シリカゲル／水-塩化メチレン等が挙げられる。

【0089】また、上記のカップリング用の触媒については、パラジウム触媒 [$\text{Pd}(\text{CH}_3\text{COO})_2$] を使用することにより、カップリングの収率を向上させることができるが、更に反応性の低い系について下記の触媒系を適用したところ、収率が改善された (但し、下記の触媒系は、後述の実施例では用いていない)。

【化244】

ホスフィン



いほうが良いとされている。上記のような $\text{Pd}(0)$ -ホスフィンの反応系中の活性種の具体的な構造については良く分かっていない)。

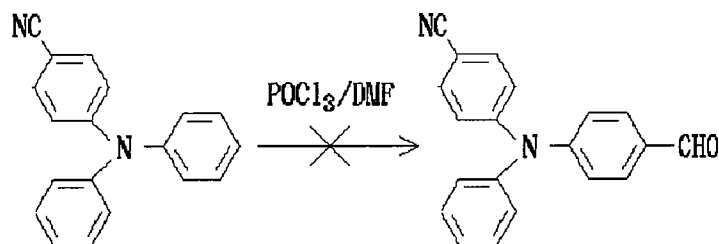
【0091】パラジウム触媒系の典型的な組み合わせ

還流2～10時間である。

【0092】前記一般式(57)又は(58)のベンズアルデヒドは、上述した合成中間体1又は1'と同様、具体的には、前記した構造式(27)－1、(27)－2、(27)－3、(27)－4、(27)－5、(27)－6、(27)－7、(27)－8、(27)－9、(27)－10又は(27)－11で表されるものであってよい。

【0093】上述した一般式〔V〕又は〔VI〕、或いは〔V'〕又は〔VI'〕で表される本発明の合成中間体1

例1)



【0095】オキシ塩化リン－ジメチルホルムアミド付加体による方法では、活性部位が2点以上あるとき、反

又は1'を得るには、合成中間体2又は2'である3級アミンをアルデヒドに変換するために、オキシ塩化リン(POCl_3)－ジメチルホルムアミド(DMF)付加体を用いたが、この方法では例えば下記の如き問題点が生じる場合がある。

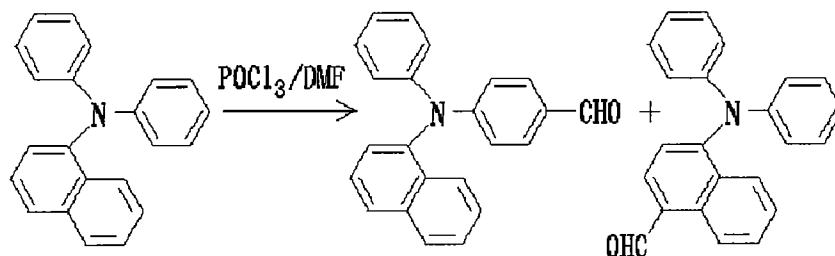
【0094】3級アミンがシアノ基などの置換基を有していて電子吸引性を帯びているとき、オキシ塩化リン－ジメチルホルムアミド付加体が反応しにくい。

【化245】

応の位置選択性が低い。

【化246】

例2)



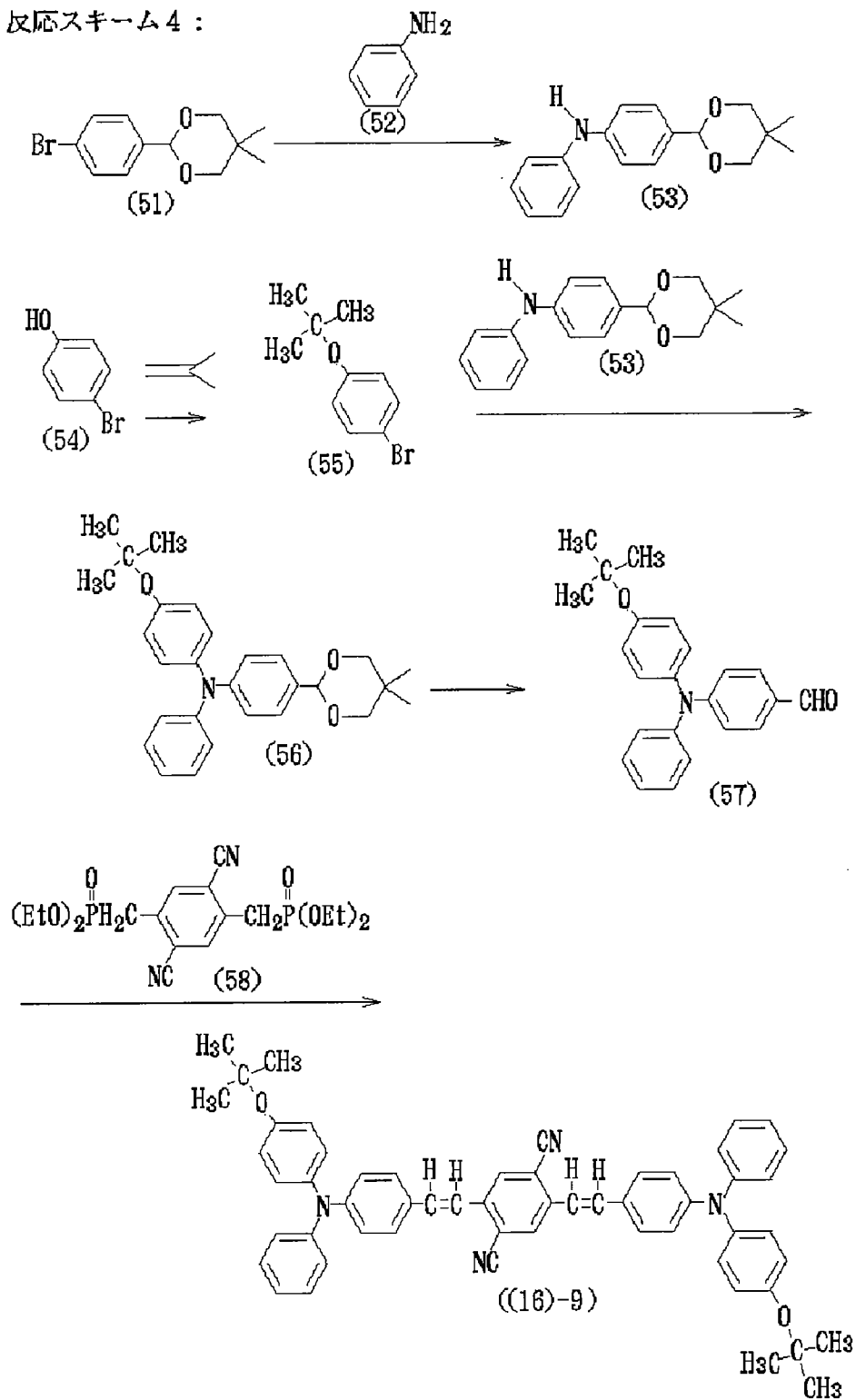
【0096】そこで、前記一般式(49)、(49')又は(52)のアセタール化合物を用い、これを一般式(48)、(50)又は(51)の化合物と反応させることによって、位置選択性良く容易に目的とするアルデヒドを合成することができる。この反応を含む本発明の

化合物の合成方法を反応スキームで示すと、例えば次の反応スキーム4、5、6の如くとなる。

【0097】(1)ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)－9)の合成

【化247】

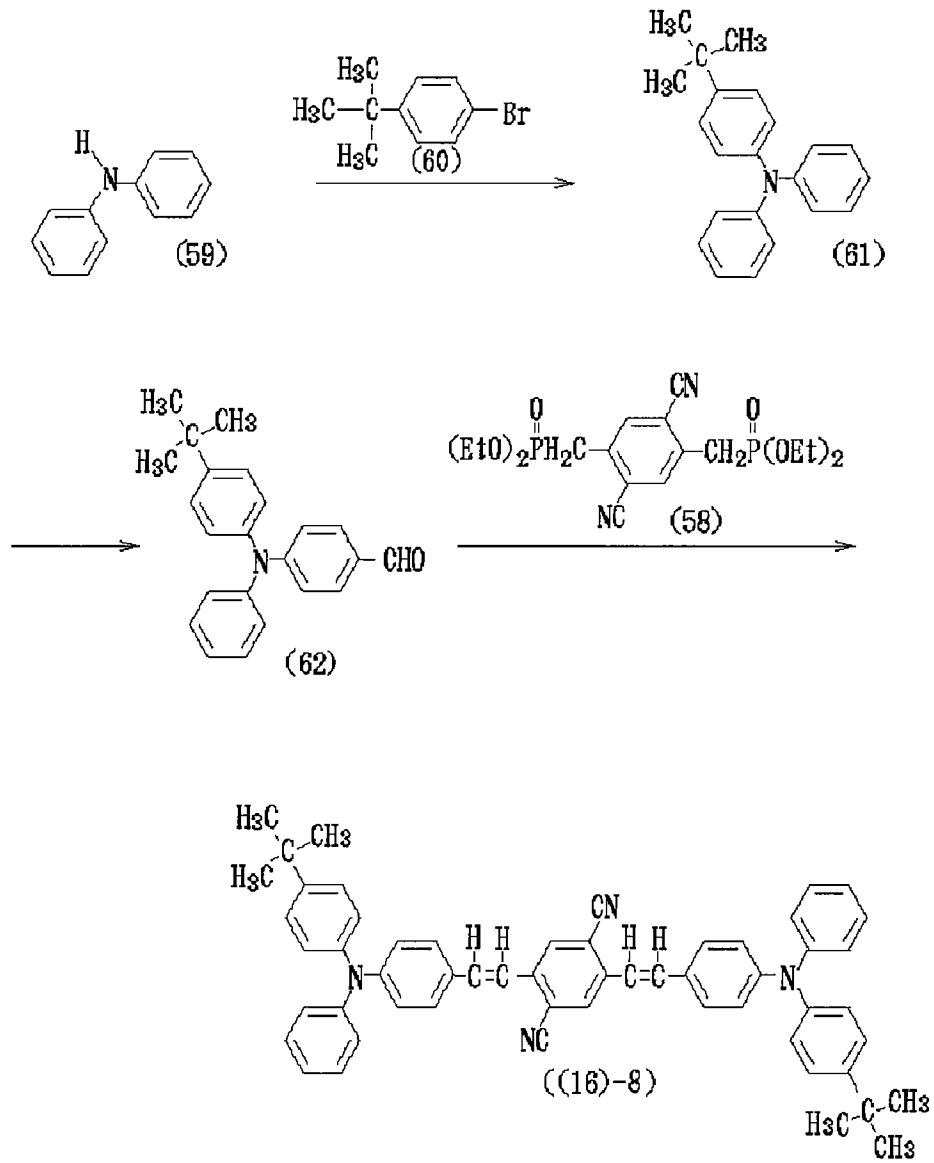
反応スキーム 4 :



【0098】 (2) ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-8)の合成

【化248】

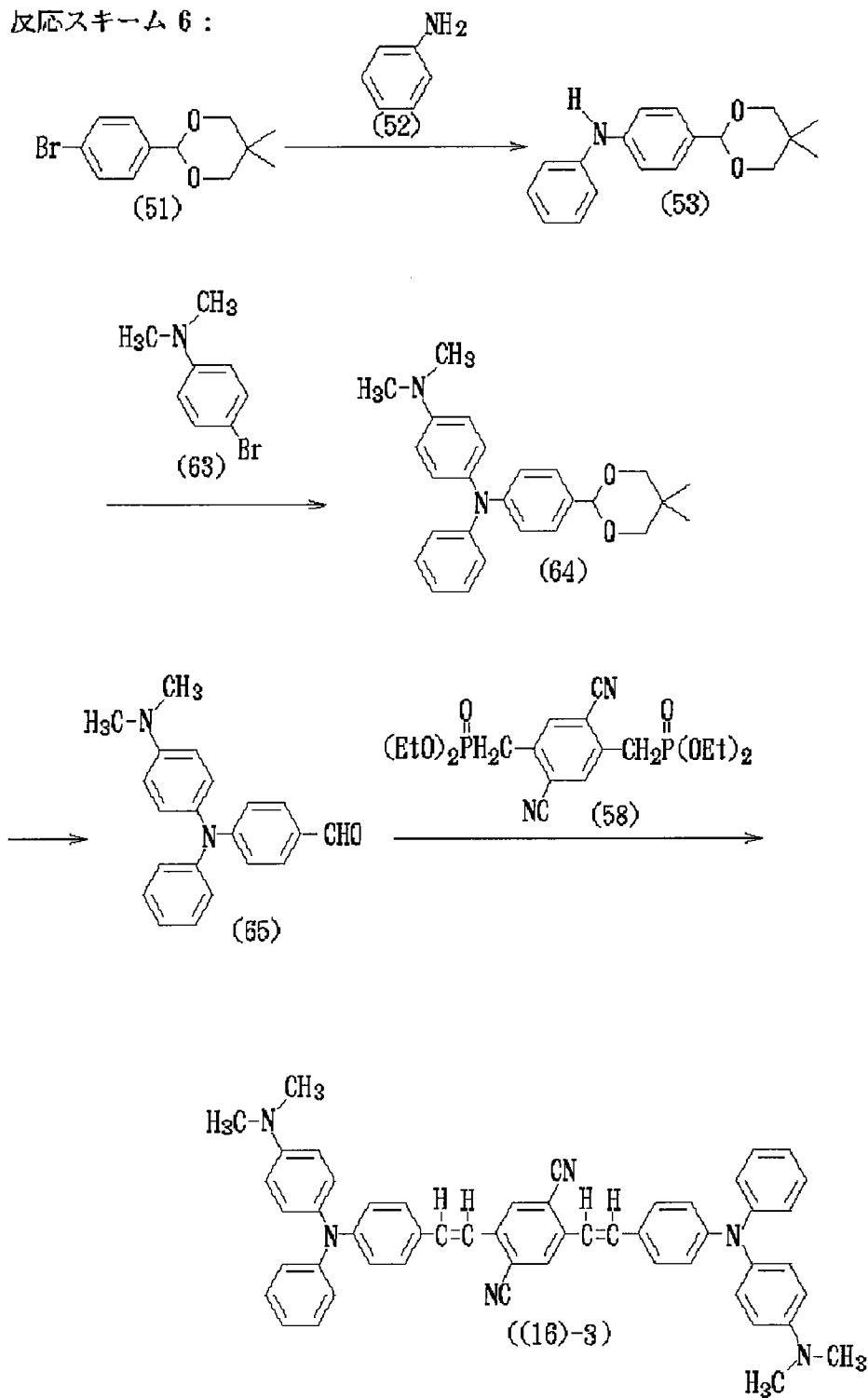
反応スキーム 5 :



【0099】 (3) ビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物 (構造式 (16) - 3) の合成

【化249】

反応スキーム 6 :



【0100】図45～図48は、本発明の化合物を有機発光材料として用いる有機電界発光素子（EL素子）の例をそれぞれ示すものである。

【0101】図45は陰極3を発光光20が透過する透過型有機電界発光素子Aであって、発光20は保護層4の側からも観測できる。図46は陰極3での反射光も発光光20として得る反射型有機電界発光素子Bを示す。

【0102】図中、1は有機電界発光素子を形成するための基板であり、ガラス、プラスチック及び他の適宜の材料を用いることができる。また、有機電界発光素子を

用することもできる。2は透明電極（陽極）であり、ITO（Indium tin oxide）、 SnO_2 等を使用できる。

【0103】また、5は有機発光層であり、本発明の化合物を発光材料として含有している。この発光層について、有機電界発光20を得る層構成としては、従来公知の種々の構成を用いることができる。後述するように、例えば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれかを構成する材料が発光性を有する場合、これらの薄膜を積層した構造を使用できる。更に本発明の目的を満たす範囲で電荷

ずれか若しくは両方が、複数種の材料の薄膜を積層した構造、または、複数種の材料を混合した組成からなる薄膜を使用するのを妨げない。また、発光性能を上げるために、少なくとも1種以上の蛍光性の材料を用いて、この薄膜を正孔輸送層と電子輸送層の間に挟持した構造、更に少なくとも1種以上の蛍光性の材料を正孔輸送層若しくは電子輸送層、またはこれらの両方に含ませた構造を使用しても良い。これらの場合には、発光効率を改善するために、正孔または電子の輸送を制御するための薄膜をその層構成に含ませることも可能である。

【0104】本発明の化合物が、電子輸送性能と正孔輸送性能の両方を持つ場合、素子構成中、電子輸送層を兼ねた発光層としても、或いは正孔輸送層を兼ねた発光層としても用いることが可能である。また、本発明の化合物を発光層として、電子輸送層と正孔輸送層とで挟み込んだ構成とすることも可能である。

【0105】なお、図45及び図46中、3は陰極であり、電極材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金、或いはこれらを積層した構造を使用できる。透過型の有機電界発光素子においては、陰極の厚さを調節することにより、用途に合った光透過率を得ることができる。また、図中、4は封止・保護層であり、有機電界発光素子全体を覆う構造とすることにより、その効果が上がる。気密性が保たれれば、適宜の材料を使用することができる。また、8は電流注入用の駆動電源である。

【0106】この有機電界発光素子において、有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造（シングルヘテロ構造）を有しており、正孔輸送層又は電子輸送層の形成材料として本発明の化合物が用いられてよい。或いは、有機層が、正孔輸送層と発光層と電子輸送層とが順次積層された有機積層構造（ダブルヘテロ構造）を有しており、発光層の形成材料として本発明の化合物が用いられてよい。

【0107】このような有機積層構造を有する有機電界発光素子の例を示すと、図47は、透光性の基板1上に、透光性の陽極2と、正孔輸送層6と電子輸送層7とからなる有機層5aと、陰極3とが順次積層された積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によって封止されてなる、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子Cである。

【0108】図47に示すように発光層を省略した層構成の場合には、正孔輸送層6と電子輸送層7の界面から所定波長の発光20を発生する。これらの発光は基板1側から観測される。

【0109】また、図48は、透光性の基板1上に、透光性の陽極2と、正孔輸送層10と発光層11と電子輸送層12とからなる有機層5bと、陰極3とが順次積層された積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によ

子Dである。

【0110】図48に示した有機電界発光素子においては、陽極2と陰極3の間に直流電圧を印加することにより、陽極2から注入された正孔が正孔輸送層10を経て、また陰極3から注入された電子が電子輸送層12を経て、それぞれ発光層11に到達する。この結果、発光層11においては電子／正孔の再結合が生じて一重項励起子が生成し、この一重項励起子から所定波長の発光を発生する。

【0111】上述した各有機電界発光素子C、Dにおいて、基板1は、例えば、ガラス、プラスチック等の光透過性の材料を適宜用いることができる。また、他の表示素子と組み合わせる場合や、図47及び図48に示した積層構造をマトリックス状に配置する場合等は、この基板を共用としてよい。また、素子C、Dはいずれも、透過型、反射型のいずれの構造も採りうる。

【0112】また、陽極2は、透明電極であり、ITO（indium tin oxide）やSnO₂等が使用できる。この陽極2と正孔輸送層6（又は正孔輸送層10）との間には、電荷の注入効率を改善する目的で、有機物若しくは有機金属化合物からなる薄膜を設けてもよい。なお、保護膜4が金属等の導電性材料で形成されている場合は、陽極2の側面に絶縁膜が設けられていてもよい。

【0113】また、有機電界発光素子Cにおける有機層5aは、正孔輸送層6と電子輸送層7とが積層された有機層であり、これらのいずれか又は双方に上記した本発明の化合物が含有され、発光性の正孔輸送層6又は電子輸送層7としてよい。有機電界発光素子Dにおける有機層5bは、正孔輸送層10と上記した本発明の化合物を含有する発光層11と電子輸送層12とが積層された有機層であるが、その他、種々の積層構造を取ることができる。例えば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれか若しくは両方が発光性を有していてもよい。

【0114】また、特に、正孔輸送層6又は電子輸送層7や発光層11が本発明の化合物からなる層であることが望ましいが、これらの層を本発明の化合物のみで形成してもよく、或いは、本発明の化合物と他の正孔又は電子輸送材料（例えば、芳香族アミン類やピラゾリン類等）との共蒸着によって形成してもよい。さらに、正孔輸送層において、正孔輸送性能を向上させるために、複数種の正孔輸送材料を積層した正孔輸送層を形成してもよい。

【0115】また、有機電界発光素子Cにおいて、発光層は電子輸送性発光層7であってよいが、電源8から印加される電圧によっては、正孔輸送層6やその界面で発光される場合がある。同様に、有機電界発光素子Dにおいて、発光層は層11以外に、電子輸送層12であってよく、正孔輸送層10であってよい。発光性能を向上させるために、少なくとも1種の蛍光性材料を用いた

た構造であるのがよい。または、この蛍光性材料を正孔輸送層又は電子輸送層、或いはこれら両層に含有させた構造を構成してよい。このような場合、発光効率を改善するために、正孔又は電子の輸送を制御するための薄膜（ホールブロッキング層やエキシトン生成層など）をその層構成に含ませることも可能である。

【0116】また、陰極3に用いる材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金を使用でき、これらの金属層が積層した構造であってもよい。なお、陰極の厚みや材質を適宜選択することによって、用途に見合った有機電界発光素子を作製できる。

【0117】また、保護膜4は、封止膜として作用するものであり、有機電界発光素子全体を覆う構造とすることで、電荷注入効率や発光効率を向上できる。なお、その気密性が保たれれば、アルミニウム、金、クロム等の単金属又は合金など、適宜その材料を選択できる。

【0118】上記した各有機電界発光素子に印加する電流は通常、直流であるが、パルス電流や交流を用いてもよい。電流値、電圧値は、素子破壊しない範囲内であれば特に制限はないが、有機電界発光素子の消費電力や寿命を考慮すると、なるべく小さい電気エネルギーで効率良く発光させることが望ましい。

【0119】次に、図49は、有機電界発光素子を用いた平面ディスプレイの構成例である。図示の如く、例えばフルカラーディスプレイの場合は、赤（R）、緑（G）及び青（B）の3原色を発光可能な有機層5（5a、5b）が、陰極3と陽極2との間に配されている。陰極3及び陽極2は、互いに交差するストライプ状に設

けることができ、輝度信号回路14及びシフトレジスタ内蔵の制御回路15により選択されて、それぞれに信号電圧が印加され、これによって、選択された陰極3及び陽極2が交差する位置（画素）の有機層が発光するように構成される。

【0120】即ち、図49は例えば8×3RGB単純マトリックスであって、正孔輸送層と、発光層および電子輸送層のいずれか少なくとも一方とからなる積層体5を陰極3と陽極2の間に配置したものである（図47又は図48参照）。陰極と陽極は、ともにストライプ状にパターンニングするとともに、互いにマトリクス状に直交させ、シフトレジスタ内蔵の制御回路15および14により時系列的に信号電圧を印加し、その交叉位置で発光するように構成されたものである。かかる構成のEL素子は、文字・記号等のディスプレイとしては勿論、画像再生装置としても使用できる。また陰極3と陽極2のストライプ状パターンを赤（R）、緑（G）、青（B）の各色毎に配し、マルチカラーあるいはフルカラーの全固体型フラットパネルディスプレイを構成することが可能となる。

【0121】

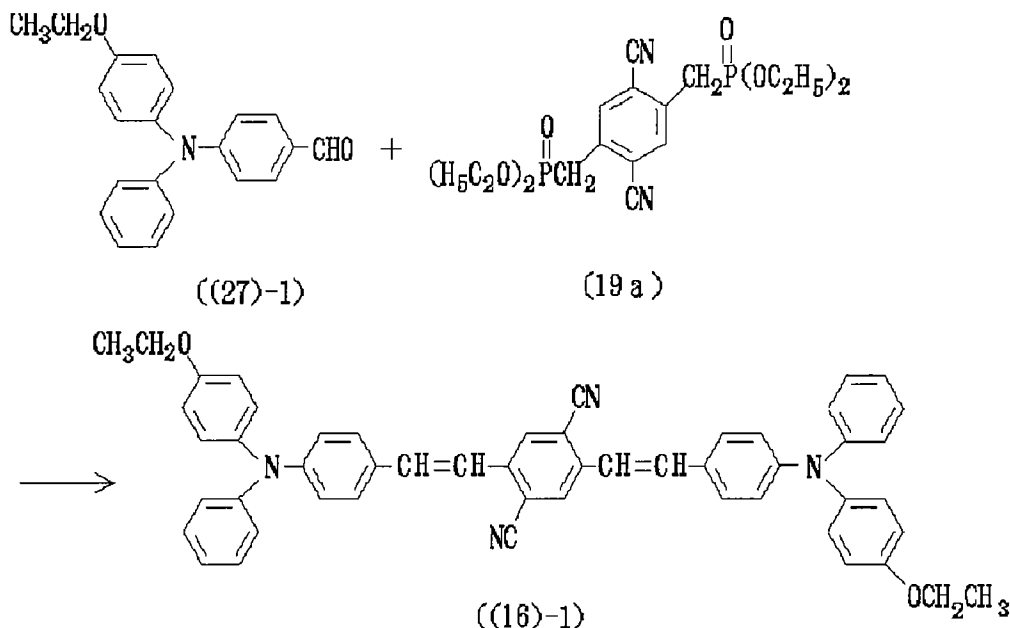
【実施例】以下、本発明を実施例について具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0122】実施例1

<ビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物（構造式（16）-1）の合成例>

【0123】

【化250】



【0124】2，5-ジ（ブromoメチル）-テレフタロニトリル750mg（2.39mmol）に亜リン酸トリエチル794mg（4.78mmol）を滴下後、1

a）を得た。反応によって生じた臭化エチルを留去し、無水テトラヒドロフラン（THF）25mlに溶解して保存した。

テトラヒドロフラン70mlに懸濁させ、窒素雰囲気下で上記で得られたジホスホン酸エステル(19a)の無水テトラヒドロフラン溶液(2.39mmol相当)を15分かけて滴下し、その後に室温で20分攪拌した。

【0126】次に、4-[N-フェニル-N-(4-エトキシフェニル)アミノ]ベンズアルデヒド((27)-1) 1.78g(5.60mmol)の無水テトラヒドロフラン溶液(40ml)を15分かけて滴下した後、室温で2時間30分攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

【0127】この反応混合物から目的物をシリカゲルクロマトグラフィー(WAKO-gel C-300, テトラヒドロフラン:ヘキサン=1:8)により精製し、アセトン-ヘキサンから再結晶することにより、ビス

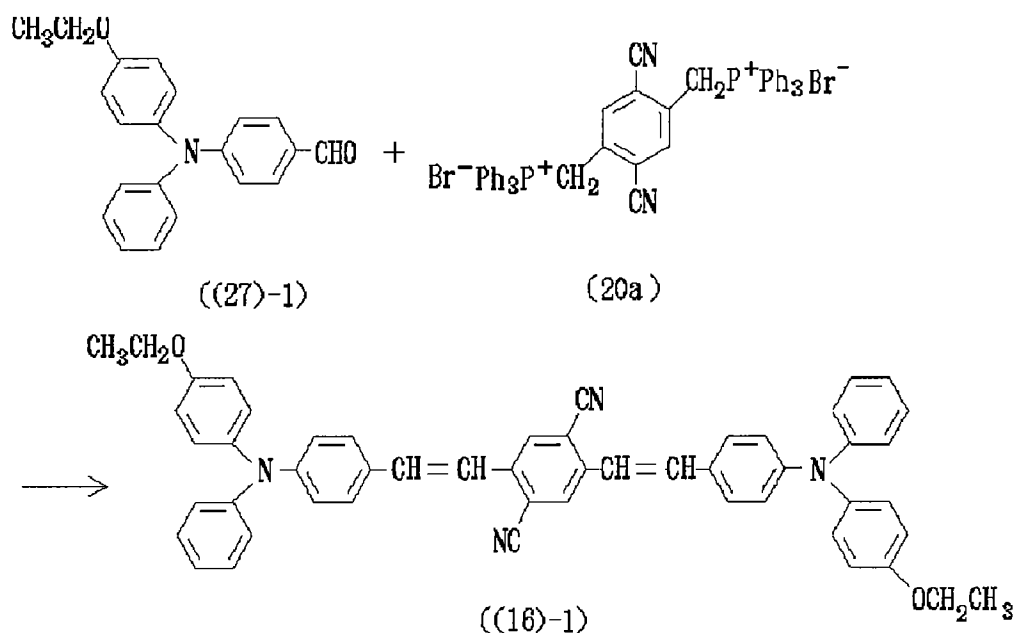
(アミノスチリル)ベンゼン化合物((16)-1) 900mgを得た。この収率は51%、ガラス転移点は140℃、融点は180℃であった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は475nm、蛍光極大波長は590nmであった。また、その¹H NMRスペクトルは図1と下記に示す通りであった(なお、図中のTMSは¹H NMRスペクトル測定時に添加する基準物質であるトリメチルシランのピーク;以下、同様)。

NMR(CDCl₃) δ(ppm): 1.32(6H, t), 4.03(4H, q), 6.83(4H, d), 6.98~7.22(22H, m), 7.40(4H, d), 7.98(2H, s)

【0128】実施例2

<ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-1)の合成例>

【化251】



【0129】2,5-ジ(ブロモメチル)-テレフタロニトリル750mg(2.39mmol)とトリフェニルホスフィン1.38g(5.26mmol)をキシレンに溶解し、20時間還流した。反応溶液を室温まで冷却し、生じた沈澱物をろ別し、キシレン5mlで洗った後、減圧乾燥し、無水テトラヒドロフラン25mlに溶解して保存した。

【0130】水素化ナトリウム18.5mmolを無水テトラヒドロフラン70mlに懸濁させ、窒素雰囲気下で上記で得られたジホスホニウム(20a)の無水テトラヒドロフラン溶液(2.39mmol相当)を15分かけて滴下し、その後室温で48時間攪拌した。

【0131】次に、4-[N-フェニル-N-(4-エトキシフェニル)アミノ]ベンズアルデヒド((27)-1) 1.78g(5.60mmol)の無水テトラヒドロフラン溶液(40ml)を15分かけて滴下した

後、室温で2時間30分攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

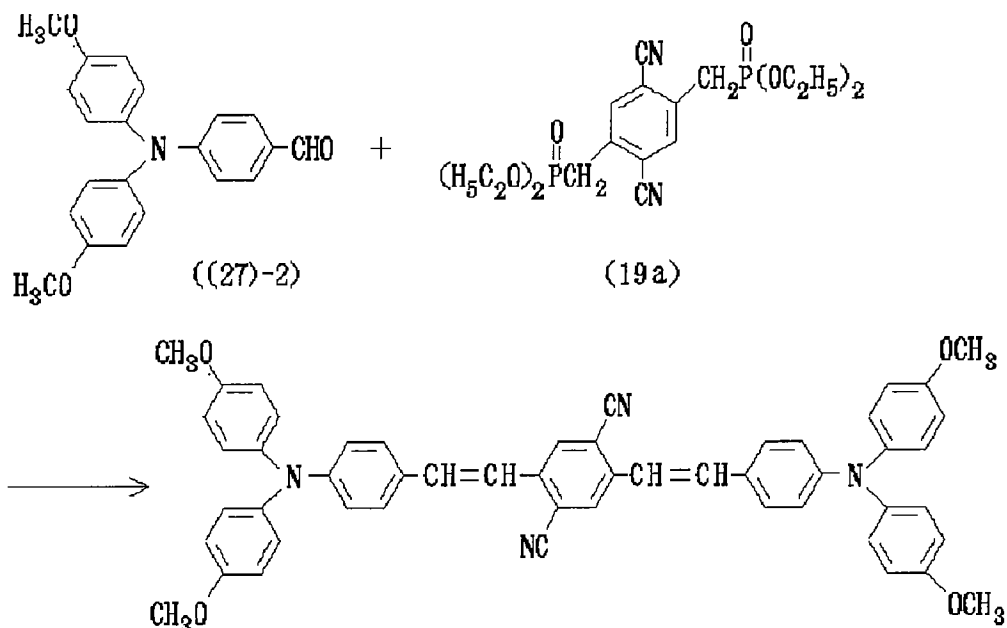
【0132】シリカゲルクロマトグラフィー(WAKO-gel C-300, テトラヒドロフラン:ヘキサン=1:8)により精製し、アセトン-ヘキサンから再結晶することにより、ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物((16)-1) 558mgを得た。この収率は31%であり、諸物性値は、実施例1で得られたビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物((16)-1)と一致した。

【0133】実施例3

<ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-2)の合成例>

【0134】

【化252】



【0135】水素化ナトリウム11.3mmolを無水テトラヒドロフラン20mlに懸濁させ、窒素雰囲気下で実施例1で得られたジホスホン酸エステル(19a)の無水テトラヒドロフラン溶液(1.13mmol相当)を15分かけて滴下し、その後に室温で20分攪拌した。

【0136】次に、4-[N,N-ジ(4-メトキシフェニル)アミノ]ベンズアルデヒド((27)-2)750mg(2.25mmol)の無水テトラヒドロフラン溶液(40ml)を15分かけて滴下した後、室温で1時間攪拌した。反応混合物を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

【0137】この反応混合物から目的物をシリカゲルクロマトグラフィー(WAKO-gel C-300, テトラヒドロフラン：ヘキサン=1：8)により精製し、

((16)-2)

アセトソン-ヘキサンから再結晶することにより、ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物((16)-2)488mgを得た。この収率は31%、ガラス転移点は130℃、融点は170℃であった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は486nm、蛍光極大波長は620nmであった。また、その¹H NMRスペクトルは図2及び下記に示す通りであった。

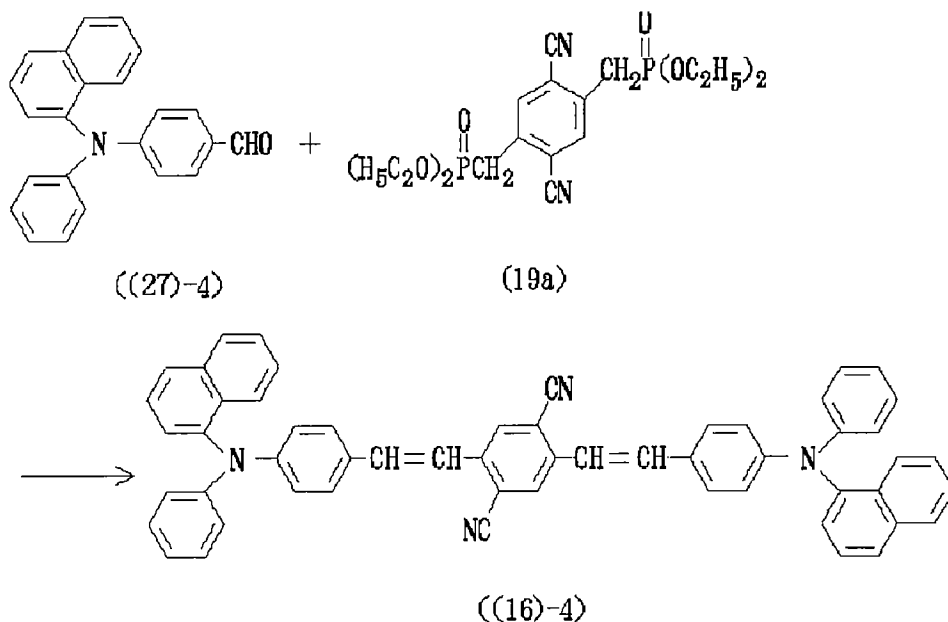
NMR(CDCl₃) δ(ppm): 3.81(12H, s), 6.84(12H, m), 7.05(8H, d), 7.19(2H, d), 7.39(4H, d), 7.98(2H, s)

【0138】実施例4

<ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-4)の合成例>

【0139】

【化253】



で実施例1で得られたジホスホン酸エステル(19a)の無水テトラヒドロフラン溶液(1.13mmol相当)を15分かけて滴下し、その後に室温で20分攪拌した。

【0141】次に、4-[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ベンズアルデヒド((27)-4)728mg(2.25mmol)の無水テトラヒドロフラン溶液(12ml)を15分かけて滴下した後、室温で2時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

【0142】この反応混合物から目的物をシリカゲルクロマトグラフィー(WAKO-gel C-300, テトラヒドロフラン:ヘキサン=1:8)により精製し、アセトン-ヘキサンから再結晶することにより、ビス

(アミノスチリル)ベンゼン化合物((16)-4)546mgを得た。この収率は63%、ガラス転移点は150℃、融点は210℃であった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は461nm、蛍光極大波長は550nmであった。また、その¹H NMRスペクトルは図3及び下記に示す通りであった。

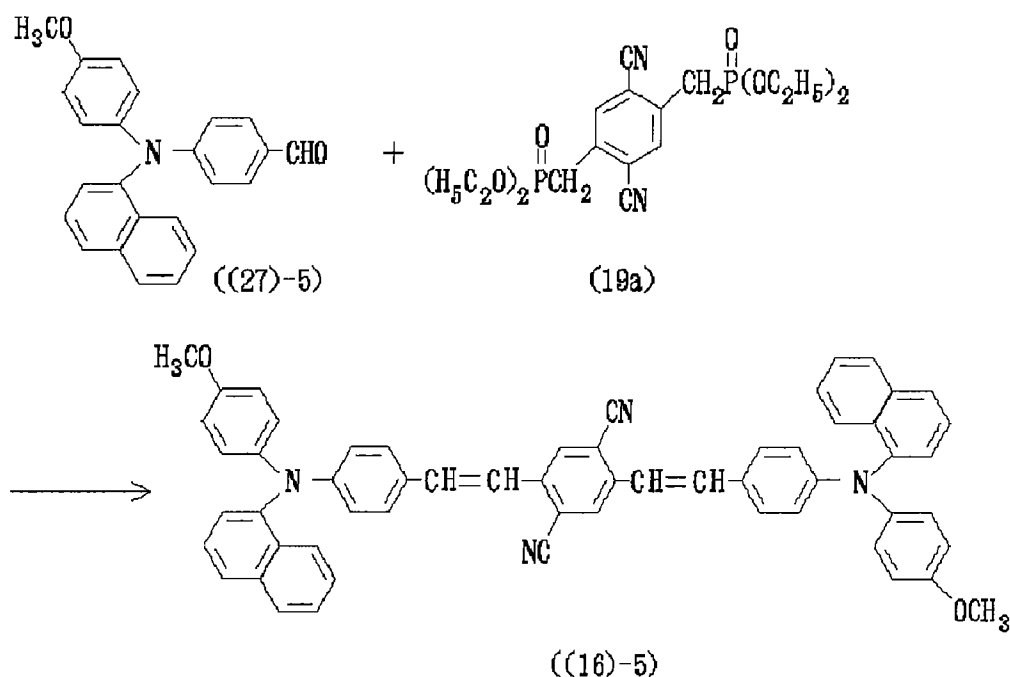
NMR(CDCl₃) δ(ppm):6.97(4H,d),7.02(2H,s),7.25~7.49(26H,m),7.81(2H,d),7.92(4H,d),7.97(2H,s)

【0143】実施例5

<ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-5)の合成例>

【0144】

【化254】



【0145】水素化ナトリウム11.3mmolを無水テトラヒドロフラン20mlに懸濁させ、窒素雰囲気下で実施例1で得られたジホスホン酸エステル(19a)の無水テトラヒドロフラン溶液(1.13mmol相当)を15分かけて滴下し、その後に室温で20分攪拌した。

【0146】次に、4-[N-(1-ナフチル)-N-(4-メトキシフェニル)アミノ]ベンズアルデヒド((27)-5)761mg(2.25mmol)の無水テトラヒドロフラン溶液(12ml)を15分かけて滴下した後、室温で2時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。

【0147】この反応混合物から目的物をシリカゲルク

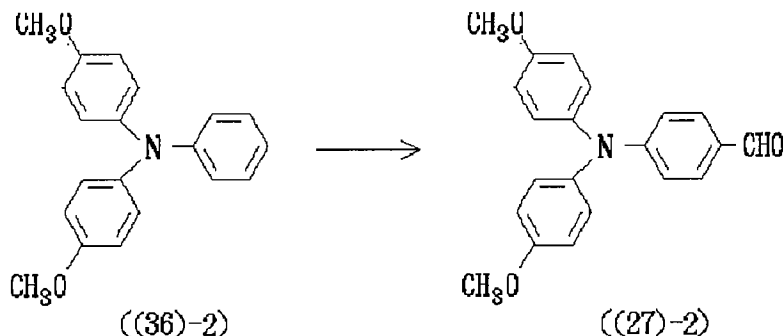
ロマトグラフィー(WAKO-gel C-300, テトラヒドロフラン:ヘキサン=1:8)により精製し、アセトン-ヘキサンから再結晶することにより、ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物((16)-5)386mgを得た。この収率は43%、ガラス転移点は130℃、融点は190℃であった。テトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は465nm、蛍光極大波長は555nmであった。

【0148】実施例6

<4-[N,N-ジ(4-メトキシフェニル)アミノ]ベンズアルデヒド(構造式(27)-2)の合成例>

【0149】

【化255】



【0150】室温にて無水ジメチルホルムアミド中での攪拌下、オキシ塩化リン 1.76 g (11.5 mmol) を滴下し、続いて N,N-ジ(4-メトキシフェニル)アニリン ((36)-2) 1.75 g の無水ジメチルホルムアミド溶液 25 ml を滴下した後、反応温度を上げ、70℃で90分攪拌した。

【0151】室温まで冷却し、氷でクエンチした後、反応溶液をトルエンにて抽出し、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウム上で乾燥した。

【0152】この反応生成物から目的物をシリカゲルクロマトグラフィー (WAKO-gel C-300, テ

トラヒドロフラン：ヘキサン=1：4)により精製し、化合物 ((27)-2) 0.750 g を得た。この収率は 39% であり、また、その ^1H NMR スペクトルは図 4 及び下記に示す通りであった。

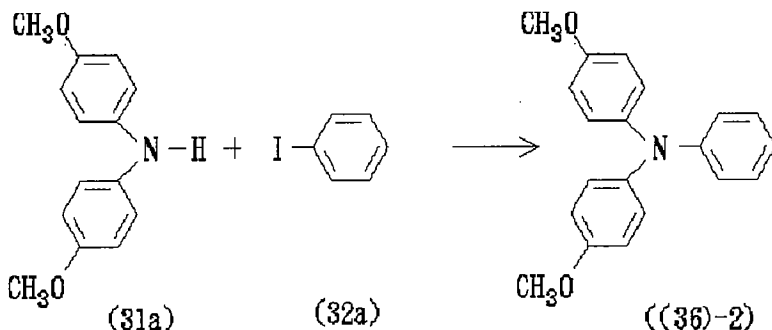
NMR (CDCl_3) δ (ppm): 3.81 (6H, s), 6.82 (2H, d), 6.90 (4H, d), 7.13 (4H, d), 7.62 (2H, d), 9.78 (1H, s)

【0153】実施例 7

<N,N-ジ(4-メトキシフェニル)アニリン (構造式 (36)-2) の合成例>

【0154】

【化256】



【0155】N,N-ジ(4-メトキシフェニル)アニリン (31a) 1.00 g (4.46 mmol)、ヨードベンゼン (32a) 1.00 g (4.90 mmol)、 $t\text{-BuONa}$ 0.502 g (5.23 mmol) および $\text{Pd}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ 0.010 g (0.044 mmol) を無水キシレンに溶解し、窒素雰囲気下で還流しながら、さらに 0.237 M の $\text{P}(\text{Bu}^t)_3$ 1.0 ml を滴下した後、4時間還流した。

【0156】この反応生成物をシリカゲルクロマトグラフィー (WAKO-gel C-300, テトラヒドロフラン：ヘキサン=1：4)により精製し、溶出液をア

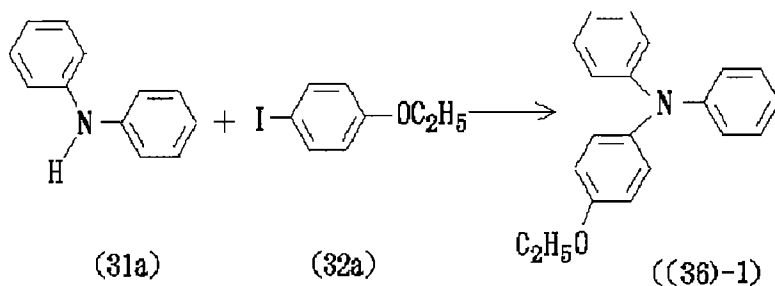
セトン：ヘキサンから再結晶して化合物 ((36)-2) を得た。この収量は 1.17 g (収率 88%) であった。また、その ^1H NMR スペクトルは図 5 及び下記に示す通りであった。

NMR (CDCl_3) δ (ppm): 3.80 (6H, s), 6.80 (4H, d), 6.82 (1H, t), 6.92 (2H, d), 7.02 (4H, d), 7.17 (2H, t)

【0157】実施例 8

<N-(1-フェニル)-N-(4-エトキシフェニル)アニリン (構造式 (36)-1) の合成例>

【化257】



【0158】N,N-ジフェニルアミン (31a) 8.

12.40 g (50 mmol)、 $t\text{-BuONa}$ 5.7

2 0.224 g (1.00 mmol) をジクロロベンゼンに溶解し、窒素雰囲気下で還流しながら、さらに 0.237 M の $P(Bu^t)_3$ 17 ml を滴下した後、4 時間還流した。

【0159】カラムクロマトグラフィー（アルミナ、ヘキサン：トルエン＝4：1）により精製し、溶出液をアセトン－ヘキサンから再結晶して目的物を得た。この収量は 10.9 g（収率 79%）であり、 1H NMR スペ

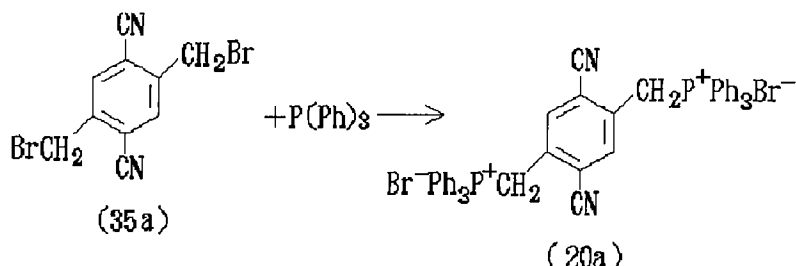
クトルを図 6 と下記に示す。

NMR ($CDCl_3$) δ (ppm): 2.28(3H, t), 4.02(2H, q), 6.84(2H, d), 6.94(2H, t), 7.03(4H, d), 7.06(2H, d), 7.20(4H, t)

【0160】実施例 9

<2, 5-ジ（プロモトリフェニルホスホメチル）テレフタロニトリル（構造式（20a））の合成例>

【化 258】



【0161】2, 5-ジ（プロモメチル）テレフタロニトリル（35a）750 mg (2.39 mmol) とトリフェニルホスフィン 1.38 g (5.26 mmol) をキシレンに溶解し、20 時間還流した。反応溶液を室温まで冷却し、生じた沈澱物をろ別し、キシレン 5 ml で洗った後、減圧乾燥し、無水テトラヒドロフラン 25 ml に溶解して保存した。これによって、実施例 2 で述

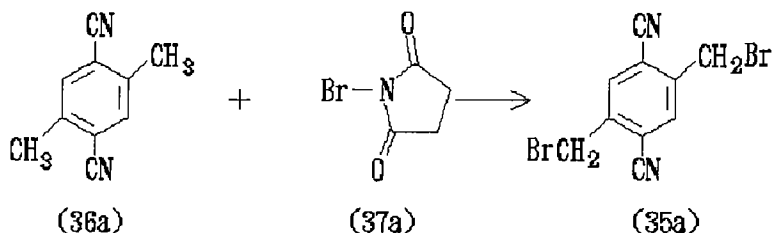
べたジホスホニウム（20a）が得られた。

【0162】実施例 10

<2, 5-ジ（プロモメチル）テレフタロニトリル（構造式（35a））の合成例>

【0163】

【化 259】



【0164】2, 5-ジメチルテレフタロニトリル（36a）1.00 g (6.4 mmol) と N-ブロモスクシンイミド（NBS）（37a）8.10 g (90 mmol) を 500 ml のクロロホルムに溶かし、高圧水銀灯（400 W）を照射しながら 48 時間還流した。

【0165】溶媒を留去し、反応生成物をシリカゲルクロマトグラフィー（WAKO-gel C-300, テトラヒドロフラン：ヘキサン＝1：4）により精製し、得られた溶出液をアセトン－ヘキサンから 2 度再結晶することにより、化合物（35a）が白色結晶として選択

的に得られた。この収量は 698 mg（収率 34%）であり、また、その 1H NMR スペクトルは図 7 及び下記に示す通りであった。

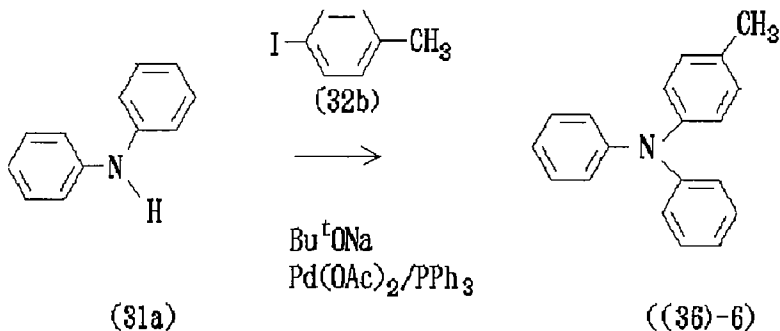
NMR ($CDCl_3$) δ (ppm): 4.60(4H, s), 7.83(2H, s)

【0166】実施例 11

<N-（p-トルイル）-N, N-ジフェニルアミン（構造式（36）-6）の合成例>

【0167】

【化 260】

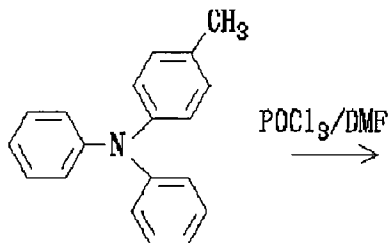


【0168】N, N-ジフェニルアミン（31a）9.70 g (57.3 mmol)、4-ヨードトルエン（3

a 6.61 g (68.8 mmol)、Pd(CH_3COO)₂ 260 mg (1.15 mmol)、およびトリフ

シレンに溶解し、窒素雰囲気下で4時間還流した。

【0169】不溶物をろ別し、アルミナクロマトグラフィー（中性アルミナ300メッシュ、テトラヒドロフラン：ヘキサン＝1：4）により精製し、溶出液をアセトン－ヘキサンから再結晶して目的物（(36)－6）を定量的に得た。この生成物（(36)－6）の¹H NMRスペクトルを図8及び下記に示す。



((36)-6)

【0172】室温にて攪拌下、無水ジメチルホルムアミド（DMF）50ml中にオキシ塩化リン5.96g（38.9mmol）を滴下し、続いてN-(p-トルイル)－N,N-ジフェニルアミン（(36)－6）5.04g（19.4mmol）の無水ジメチルホルムアミド（DMF）溶液50mlを滴下した後、反応温度を上げ、70℃で90分攪拌した。

【0173】室温まで冷却し、反応混合液を少量の水でクエンチし、シリカゲルクロマトグラフィー（WAKO－gel C-300, テトラヒドロフラン：ヘキサン

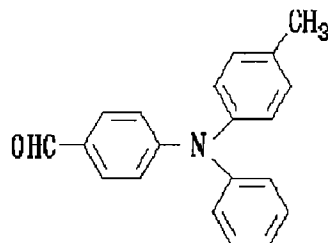
NMR (CDCl₃) δ (ppm): 2.31(3H, s), 6.94~7.27(14H, m)

【0170】実施例12

<4-[N-(p-トルイル)－N-フェニルアミノ]ベンズアルデヒド（構造式(27)－6）の合成例>

【0171】

【化261】



((27)-6)

＝1：4）により精製し、オイル状物質（(27)－6）をほぼ定量的に得た。この生成物の¹H NMRスペクトルを図9と下記に示す。

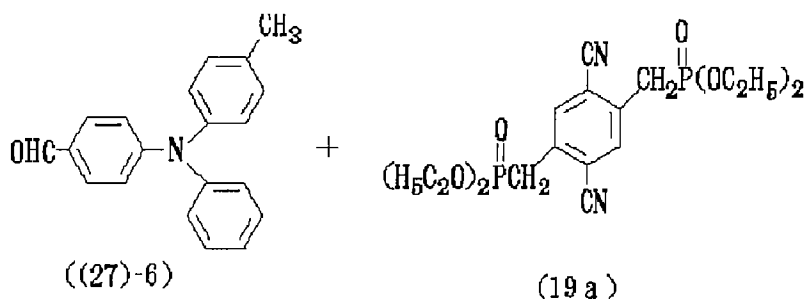
NMR (CDCl₃) δ (ppm): 2.35(3H, s), 6.96~7.64(11H, m), 7.66(2H, d), 9.80(1H, s)

【0174】実施例13

<ビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物（構造式(16)－6）の合成例>

【0175】

【化262】



((16)-6)

【0176】水素化ナトリウム14.5mmolを無水テトラヒドロフラン（THF）20mlに懸濁させ、窒素雰囲気下でジホスホン酸エステル（19a）の無水テトラヒドロフラン溶液（2.33mmol相当）を滴下し、60分攪拌した。次に、4-[N-(p-トルイル)－N-フェニルアミノ]ベンズアルデヒド（(2

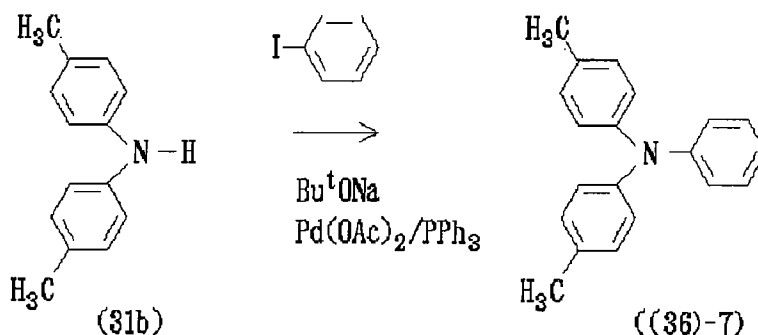
7)-6）の無水テトラヒドロフラン溶液（40ml）を滴下した後、室温で12時間攪拌した。

【0177】反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウム上で乾燥した。シリカゲルクロマトグラフィー（WAKO－gel C-300, テトラヒドロフラン：ヘキサン＝1：4→1：

ことにより、ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物((16)-6) 0.787 gを得た。この収率は49%であり、¹H NMRスペクトルを図10と下記に示す。

NMR (CDCl₃) δ (ppm): 2.34(6H, s), 7.01~7.30 (26H, m), 7.42 (4H, d), 7.99 (2H, s)

【0178】この物質((16)-6)のテトラヒドロ



【0181】N, N-ジ(p-トルイル)アミン(31b) 10.0 g (50.7 mmol)、4-ヨードベンゼン 10.3 g (50.7 mmol)、t-BuONa 5.85 g (60.8 mmol)、Pd(CH₃COO)₂ 300 mg (1.34 mmol) およびトリフェニルホスフィン 1.50 g (5.71 mmol) をキシレン 500 ml に溶解し、窒素雰囲気下で4時間還流した。

【0182】不溶物をろ別し、アルミナクロマトグラフィー(中性アルミナ300メッシュ、テトラヒドロフラン:ヘキサン=1:4)により精製し、溶出液をアセト

フラン溶液の可視吸収極大は469 nm、蛍光極大波長は568 nmであった。

【0179】実施例14

<N, N-ジ(p-トルイル-N-フェニルアミン(構造式(36)-7)の合成例>

【0180】

【化263】

ン-ヘキサンから再結晶して目的物((36)-7)を定量的に得た。この生成物の¹H NMRスペクトルを図11と下記に示す。

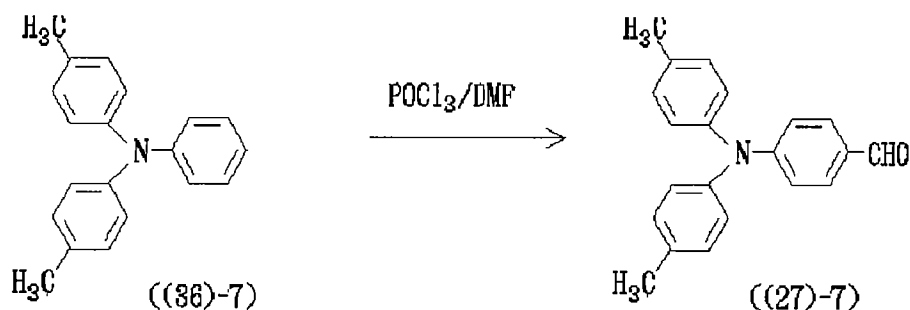
NMR (CDCl₃) δ (ppm): 2.30(6H, s), 6.90~7.07(1H, m), 7.16~7.22(2H, m)

【0183】実施例15

<4-[N, N-ジ(p-トルイル)アミノ]ベンズアルデヒド(構造式(27)-7)の合成例>

【0184】

【化264】



【0185】室温にて攪拌下、無水ジメチルホルムアミド(DMF) 20 ml 中にオキシ塩化リン 5.90 g (38.4 mmol) を滴下し、続いてN, N-ジ(p-トルイル)-N-フェニルアミン((36)-7) 7.00 g (25.6 mmol) の無水ジメチルホルムアミド溶液 50 ml を滴下した後、室温で24時間攪拌した。

【0186】反応混合液を少量の水でクエンチした後、トルエンで抽出し、飽和食塩水で洗い、Na₂SO₄上で乾燥した。シリカゲルクロマトグラフィー(WAKO-ge1 C-300, テトラヒドロフラン:ヘキサン

=1:4)により精製し、オイル状物質((27)-7)をほぼ定量的に得た。この生成物の¹H NMRスペクトルを図12と下記に示す。

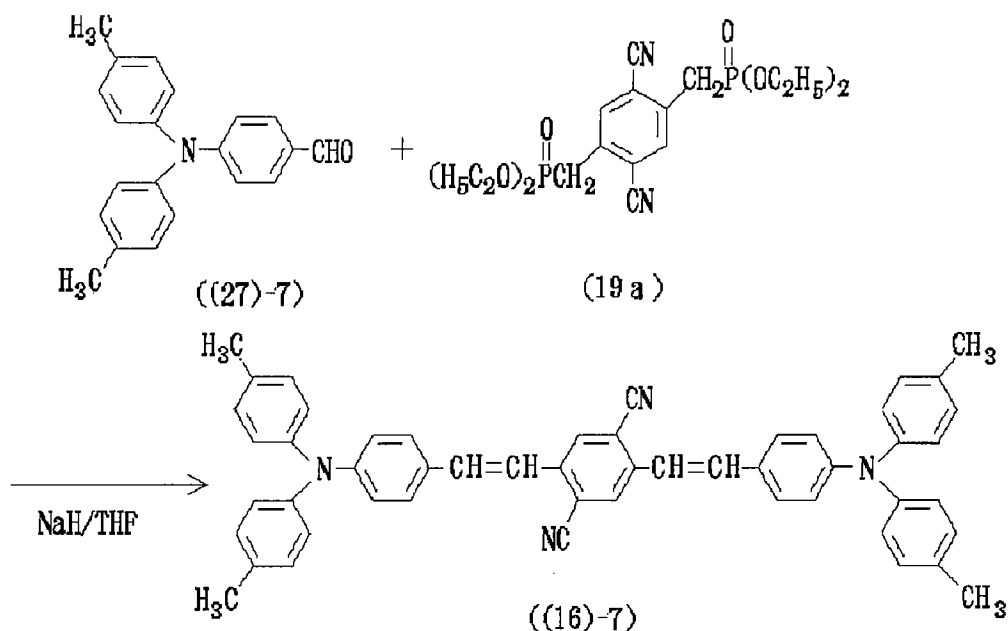
NMR (CDCl₃) δ (ppm): 2.35(6H, s), 6.93(2H, d), 7.06(4H, d), 7.15(4H, d), 7.64(4H, d), 9.78(1H, s)

【0187】実施例16

<ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-7)の合成例>

【0188】

【化265】



【0189】水素化ナトリウム14.3mmolを無水テトラヒドロフラン（THF）20mlに懸濁させ、窒素雰囲気下でジホスホン酸エステル（19a）750mg（2.39mmol）の無水テトラヒドロフラン溶液20mlを滴下し、次に4-〔N,N-ジ（p-トルイル）アミノ〕ベンズアルデヒド（（27）-7）（2.39mmol相当）25mlの無水テトラヒドロフラン溶液を滴下した後、室温で48時間攪拌した。

【0190】反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウム上で乾燥した。シリカゲルクロマトグラフィー（WAKO-gel C-300，テトラヒドロフラン：ヘキサン=1：4→1：1）により精製し、アセトン-ヘキサンから再結晶する

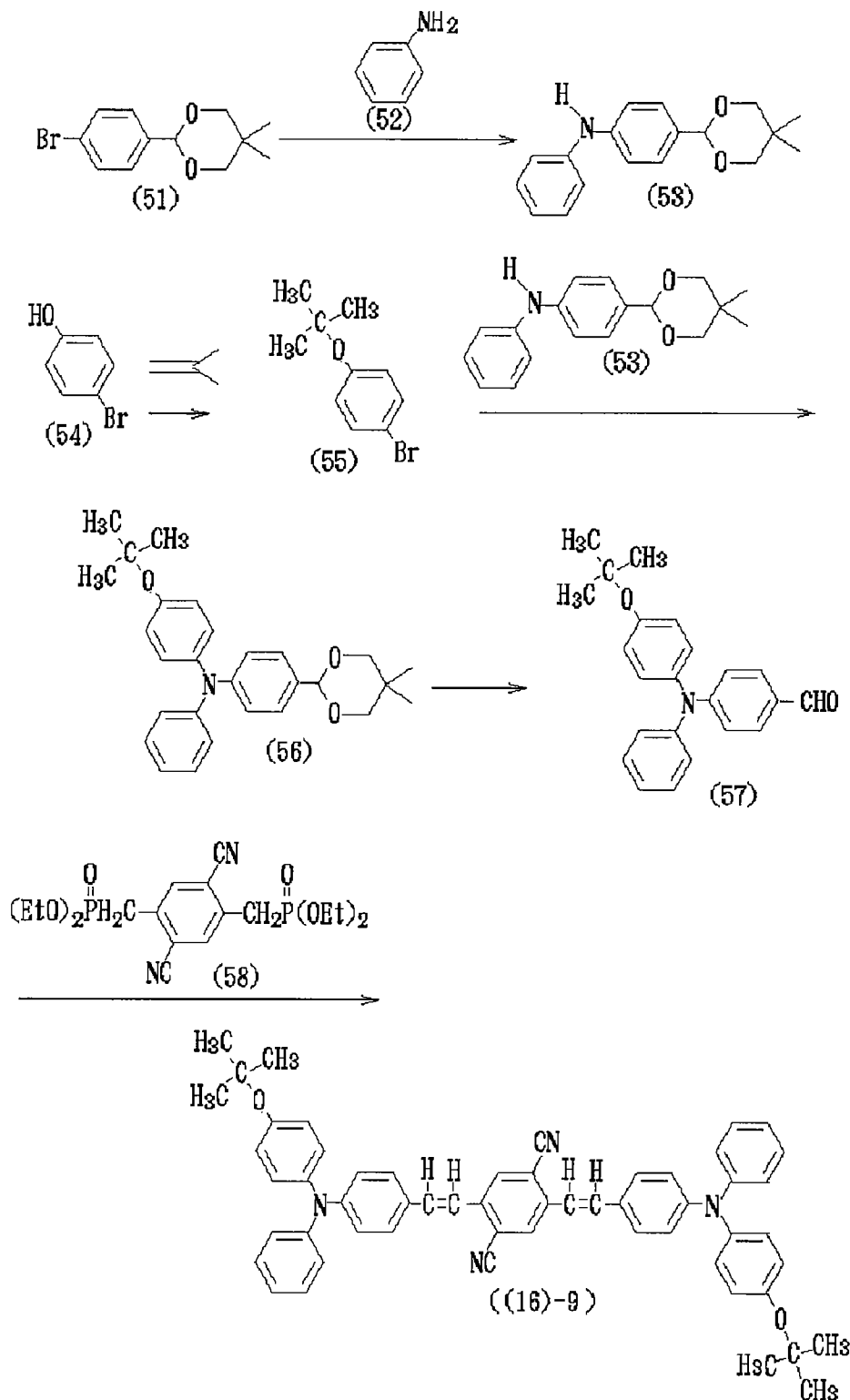
ことにより、ビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物（（16）-7）431mgを得た。この収率は25%であり、¹H NMRスペクトルを図13と下記に示す。
NMR（CDCl₃）δ（ppm）：2.33（6H，s），6.97～7.21（24H，m），7.39（4H，d），7.97（2H，s）

【0191】この物質のテトラヒドロフラン溶液の可視吸収極大は476nm、蛍光極大波長は590nmであった。

【0192】実施例17

<ビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物（構造式（16）-9）の合成例>

【化266】



【0193】(1) 中間体(53)の合成

アセタール化合物(51) 2.75g(10.2mmol)、アニリン(52) 20ml(215mmol)、 $t\text{-BuONa}$ 1.00g(10.4mmol)及び $\text{Pd}(\text{OAc})_2$ 0.022g(0.047mmol)をキシレン150mlに溶解し、窒素雰囲気下で還流しながら、さらに0.1Mの $\text{P}(t\text{-Bu})_3$ 2.0ml(0.20mmol)を滴下した後、6時間還流した。アルミナカラムクロマトグラフィー(200メッシュ、トルエン:THF=1:1)により原料物質を除き、減

を定量的に得た。

【0194】この生成物は、 ^1H NMR及びFAB-MS測定により目的物(53)と同定した。

^1H NMR(CDCl_3) δ (ppm): 0.80(3H, s), 1.30(3H, s), 3.63(2H, d), 3.76(2H, d), 5.34(1H, s), 5.74(1H, brs), 6.92(1H, t), 7.06(4H, d), 7.26(2H, t), 7.39(2H, d) 中間体(53)の ^1H NMRスペクトルを図14に示す。

【0195】(2) 中間体(55)の合成

化合物(54) 5.00g(28.9mmol)を50

下で攪拌しつつ0.2 mlの $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{H}$ を添加した後、イソブチレングスを3時間かけてゆっくりとバブリングさせた。6 mlの NEt_3 を添加して反応溶液を中和し、ドライアルミナ(300メッシュ、トルエン)を通して原料物質を除き、溶媒を留去して化合物(55)を定量的に得た。

【0196】この生成物は、 ^1H NMR及びFAB-MS測定により、目的物(55)と同定した。

^1H NMR(CDCl_3) δ (ppm):1.33(9H,s),6.86(2H,d),7.37(2H,d)

中間体(55)の ^1H NMRスペクトルを図15に示す。

【0197】(3) 中間体(56)の合成

化合物(55) 0.809 g (3.53 mmol)、化合物(53) 1.00 g (3.53 mmol)、 $t\text{-BuONa}$ 0.407 g (4.24 mmol)、及び $\text{Pd}(\text{OAc})_2$ 7.9 mg (0.035 mmol)を100 mlのキシレンに懸濁させ、窒素雰囲気下、120°Cで還流攪拌しつつ、0.1 Mの $\text{P}(t\text{-Bu})_3$ 1.4 mlを添加してさらに4時間還流した。反応溶液を放冷し、不溶物を除いてろ液を濃縮し、シリカゲルクロマトグラフィー(WAKO-gel C-300、ヘキサン:THF=20:1)により精製し、アセトン-ヘキサンから再結晶して白色結晶1.44 gを得た。

【0198】この生成物は、 ^1H NMR及びFAB-MS測定により目的物(56)と同定した(収率95%)。

^1H NMR(CDCl_3) δ (ppm):0.79(3H,s),1.30(3H,s),1.34(9H,s),3.64(2H,d),3.76(2H,d),5.34(1H,s),6.86(2H,d),6.96-7.06(7H,m),7.22(2H,d),7.36(2H,d)

化合物(56)の ^1H NMRスペクトルを図16に示す。

【0199】(4) 中間体(57)の合成

化合物(56) 1.44 g (3.34 mmol)とTPPS(p-トルエンスルホン酸ピリジニウム) 0.084 g (0.334 mmol)をアセトン60 ml-水10 mlの混合溶媒の溶解し、3時間還流した。溶媒を留去し、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、 Na_2SO_4 上で乾燥した。シリカゲルクロマトグラフィー

(WAKO-gel C-300、ヘキサン→ヘキサン:THF=8:1)により精製し、生成物(57) 0.940 gを得た。

【0200】この生成物は、 ^1H NMR及びFAB-MS測定により目的物(56)と同定した(収率81%)。

^1H NMR(CDCl_3) δ (ppm):1.37(9H,s),6.96(4H,d),7.07(2H,d),7.16(2H,m),7.33(2H,m),7.66(2H,d),9.79(1H,s),

化合物(57)の ^1H NMRスペクトルを図17に示す。

【0201】(5) ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物((16)-9)の合成

NaH (60%鉱油分散) 9.54 mmolをヘキサンで2度洗い、無水THF(テトラヒドロフラン)10 mlに懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下でホスホン酸エステル(58)(1.59 mmol)と化合物(57)

0.940 g (2.72 mmol)の無水THF溶液50 mlを1時間かけて滴下し、その後、氷浴上で3時間攪拌し、室温にて更に12時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、トルエンで抽出して飽和食塩水で洗った後、 Na_2SO_4 上で乾燥した。得られた固体をシリカゲルクロマトグラフィー(WAKO-gel C-300、トルエン)により精製し、トルエンから再結晶して生成物((16)-9) 0.856 gを得た。

【0202】この生成物は、 ^1H NMR及びFAB-MS測定により目的物((16)-9)と同定した(収率66%)。この生成物の ^1H NMRスペクトルを図18と下記に示す。

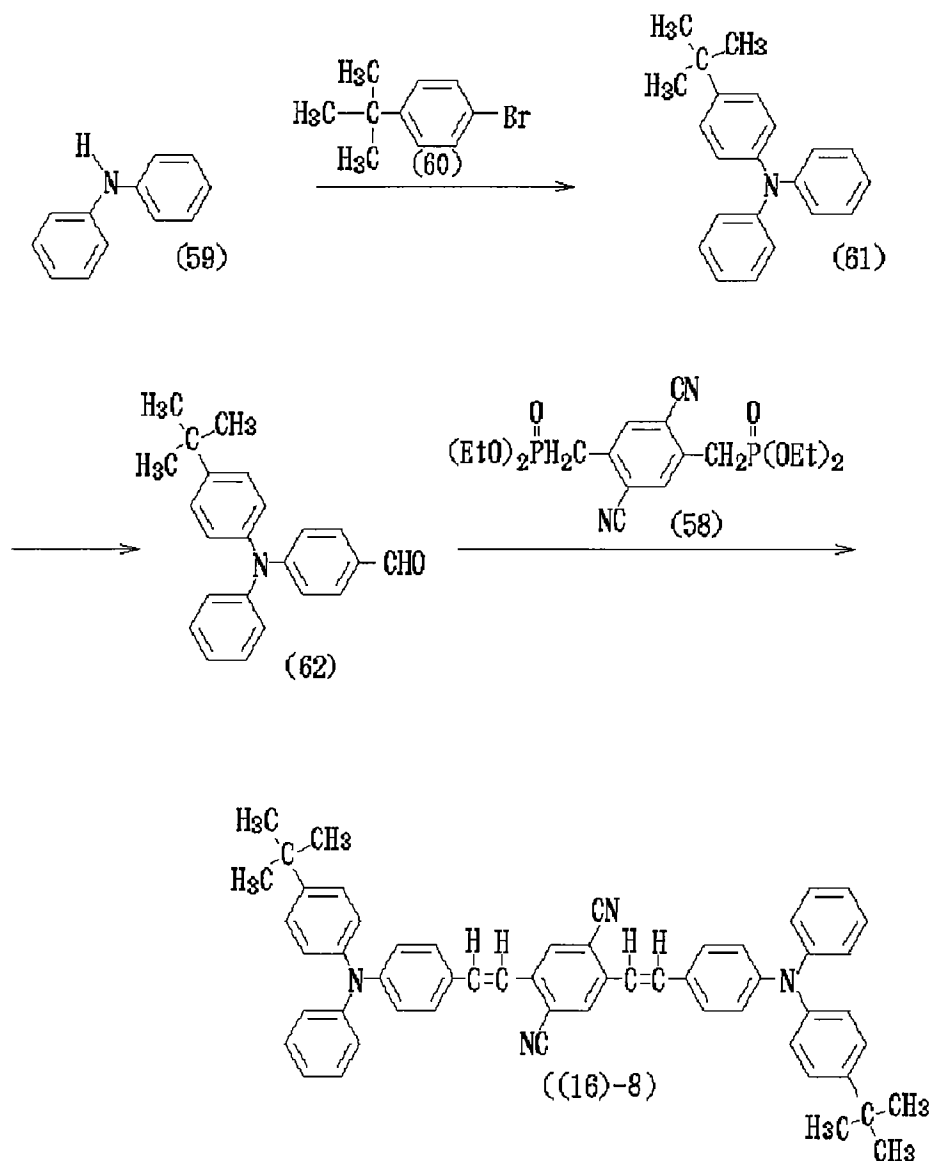
^1H NMR(CDCl_3) δ (ppm):1.37(18H,s),6.92(4H,d),7.00-7.32(22H,m),7.42(4H,d),7.98(2H,s)

【0203】この生成物のトルエン溶液の可視吸収極大波長は481 nm、蛍光極大波長は540 nmであった。

【0204】実施例18

<ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-8)の合成例>

【化267】



【0205】(1) 中間体(61)の合成
1-ブromo-4-t-ブチルベンゼン(60) 12.5 g (58.7 mmol)、ジフェニルアミン(59) 9.93 g (58.7 mmol)、Pd(OAc)₂ 263 mg (1.17 mmol)、トリス(2-メチルフェニル)ホスフィン 1.43 g (4.69 mmol) 及び t-BuONa 8.45 g (88.0 mmol) のキシレン懸濁液 200 ml を 3 時間、120℃で還流した。反応混合液を冷却した後、これに水を加え、トルエンで抽出(3回)し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥、濃縮した。得られた残渣をカラムクロマトグラフィーで精製して、トリアリールアミン(61) 18.4 g を無色結晶として定量的に得た。

【0206】この生成物は、¹H NMR 及び FAB-M S 測定により目的物(61)と同定した。

¹H NMR (CDCl₃) δ (ppm): 1.32(9H, s), 6.98-7.09 (8H, m), 7.19-7.27(6H, m)

この生成物の¹H NMRスペクトルを図19に示す。

【0207】(2) 中間体(62)の合成

100 ml に滴下し、120℃で5分間攪拌した。得られた赤色溶液を室温まで冷却し、トリアリールアミン(61) 18.0 g (59.7 mmol) を加えた。得られた混合物を80℃で攪拌した。この反応混合物を減圧下で濃縮したのち、NaHCO₃/氷に注意深く注いだ。得られた混合物を酢酸エチルで抽出(3回)し、有機層をNa₂SO₄で乾燥、濃縮した。そして、残渣をカラムクロマトグラフィーで精製し、ジアリールアミノベンズアルデヒド(62) 6.69 g を淡黄色結晶として得た。

【0208】この生成物は、¹H NMR 及び FAB-M S 測定により、目的物(62)と同定した(収率34%)。

¹H NMR (CDCl₃) δ (ppm): 1.33(9H, s), 6.99(2H, d), 7.08(2H, d), 7.17(3H, m), 7.33(4H, m), 7.66(2H, d)

この生成物の¹H NMRスペクトルを図20に示す。

【0209】(3) ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-8)の合成

NaH(60%鉱油分散) 9.54 mmol をヘキサン

窒素雰囲気下で攪拌した。化合物 (58) 1.59 mmol と (62) 1.26 g (3.82 mmol) の無水 THF 溶液 40 ml を 15 分かけて滴下し、その後氷浴上で 6 時間攪拌し、室温にて更に 6 時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗った後、 Na_2SO_4 上で乾燥した。シリカゲルクロマトグラフィー (WAKO-gel C-300、トルエン) により精製し、トルエンから再結晶して生成物 ((16)-8) 1.11 g を得た。

【0210】この生成物は、 ^1H NMR および FAB-MS 測定により、目的物 ((16)-8) と同定した (収率 90%)。また、この ^1H NMR スペクトルを図

21 と下記に示す。

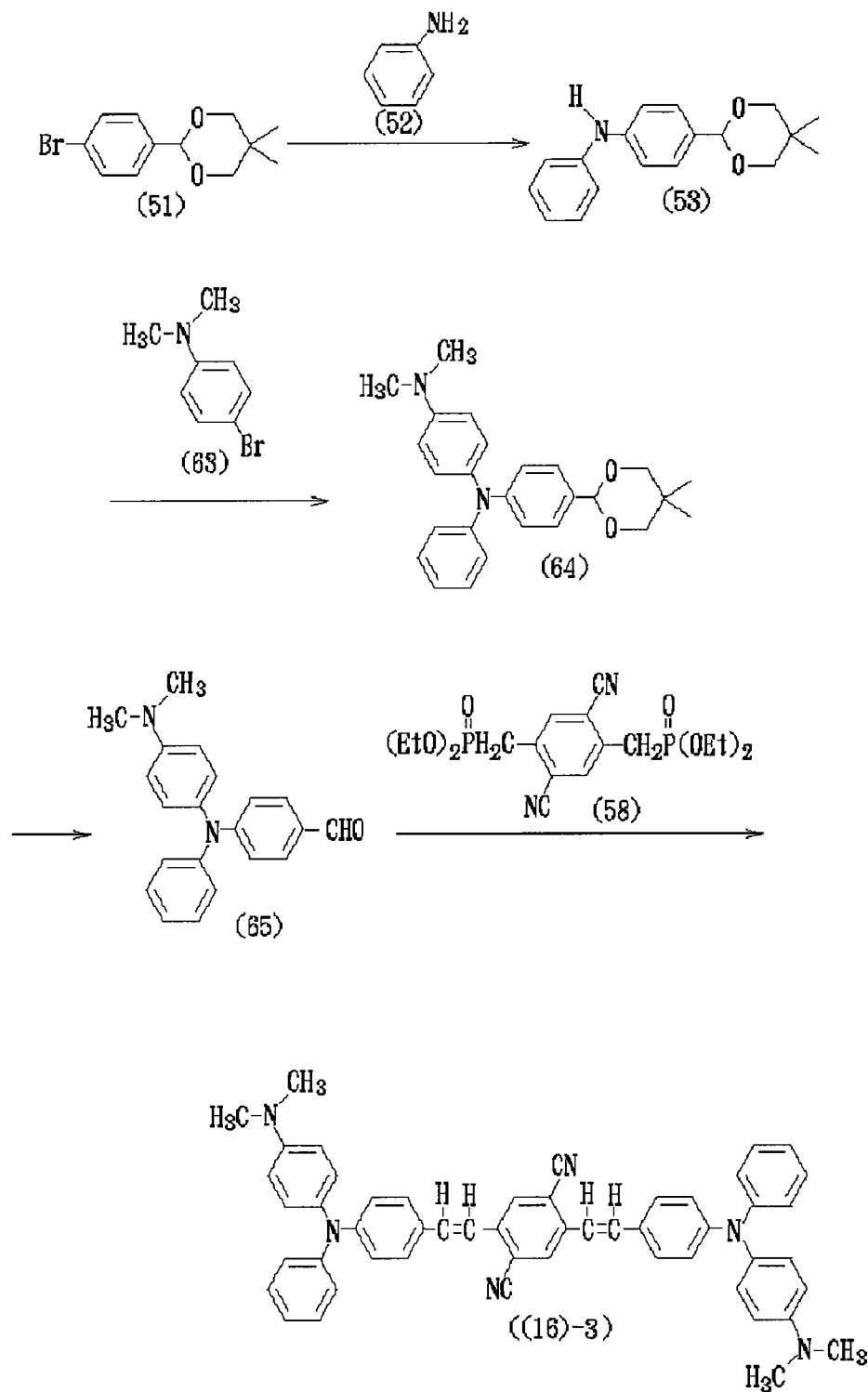
^1H NMR (CDCl_3) δ (ppm): 1.33(18H, s), 7.02-7.07(10H, m), 7.14(4H, d), 7.22-7.32(6H, m), 7.33(4H, d), 7.99(2H, s)

【0211】この生成物のトルエン溶液の可視吸収極大波長は 479 nm、蛍光極大波長は 535 nm であった。

【0212】実施例 19

<ビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物 (構造式 (16)-3) の合成例>

【化 268】



【0213】(1) 中間体(64)の合成
 目的物((16)-3)を合成したが、まず、実施例17と同様に合成した化合物(53) 2.85g(10.1mmol)、4-ブロモ-N,N-ジメチルアニリン(63) 2.00g(10.0mmol)、t-BuONa 1.20g(12.0mmol)及びPd(OAc)₂ 0.066g(0.29mmol)をキシレン150mlに溶解し、窒素雰囲気下で還流しながら、更に0.1MのP(t-Bu)₃ 12.0ml(0.40mol)を滴下した後、9時間還流した。シリカゲルク

F：ヘキサン=1：10)により精製し、目的物(64)の黄色結晶2.28gを得た。

【0214】この生成物は、¹H NMR及びFAB-M S測定により、目的物(64)と同一した(収率57%)。

¹H NMR(CDCl₃) δ(ppm): 0.74(3H, s), 1.17(3H, s), 2.89(6H, s), 3.62(4H, q), 5.32(1H, s), 6.72(2H, d), 6.86(7H, m), 7.20-7.27(4H, m)

この生成物の¹H NMRスペクトルを図22に示す。

【0215】(2) 中間体(65)の合成

トルエンスルホン酸一水和物 0.133 g (0.700 mmol) をアセトン 300 ml、水 25 ml に溶解し、2 時間還流した。アセトンを留去し、 Na_2SO_4 上で乾燥した後、シリカゲルクロマトグラフィー (Wakogel C-300、トルエン) により精製し、目的物 (65) の黄色結晶 1.67 g を得た。

【0216】この生成物は、 ^1H NMR 及び FAB-MS 測定により目的物 (65) と同定した (収率 92%)。

^1H NMR (CDCl_3) δ (ppm): 2.97(6H, s), 6.71(2H, d), 6.93(2H, s), 7.07-7.34(7H, m), 7.63(2H, d), 9.76(1H, s)

この生成物の ^1H NMR スペクトルを図 23 に示す。

【0217】(3) ビス (アミノステリル) ベンゼン化合物 (構造式 (16) - 3) の合成

NaH (60% 鉱油分散) 9.54 mmol をヘキサンで 2 度洗い、無水 THF 10 ml に懸濁させ、氷浴上、窒素雰囲気下で攪拌した。化合物 (58) 1.59 mmol と化合物 (65) 1.14 g (3.60 mmol) の無水 THF 溶液 70 ml を 15 分かけて滴下し、その後室温にて 12 時間攪拌した。反応混合液を少量の水でクエンチし、飽和食塩水で洗った後、 Na_2SO_4 上で

乾燥した。アルミナカラムクロマトグラフィー (300 mesh, トルエン: THF = 5:1) により原料物質を除き、トルエン-ヘキサンから再結晶して目的物 ((16) - 3) 1.02 g を得た。

【0218】この生成物は、 ^1H NMR 及び FAB-MS 測定により目的物 ((16) - 3) と同定した (収率 88%)。また、その ^1H NMR スペクトルを図 24 と下記に示す。

^1H NMR ($\text{DMSO}-d_6$) δ (ppm): 2.91(12H, s), 6.75(4H, d), 6.88(4H, s), 6.98-7.13(7H, m), 7.30(4H, d), 7.47(4H, d), 7.59(2H, d), 8.42(2H, s)

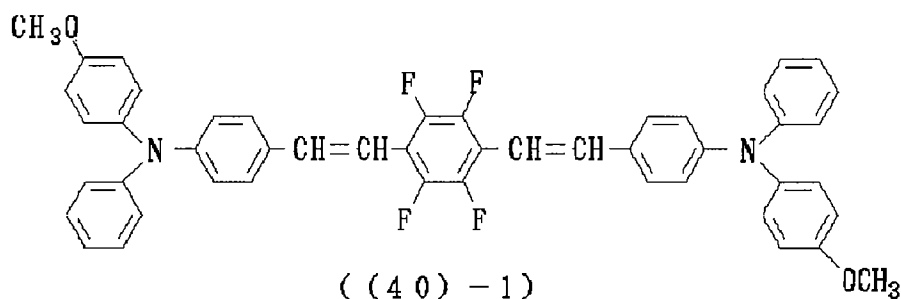
【0219】この生成物のトルエン溶液の可視吸収極大波長は 499 nm、蛍光極大波長は 620 nm であった。

【0220】実施例 20

<1, 4-ビス [2- [4- (N-4-メトキシフェニル-N-フェニル) アミノフェニル] エテニル] -2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン (構造式 (40) - 1) の合成例>

【0221】

【化 269】



【0222】水素化ナトリウム (60% ミネラルオイル懸濁状、104 mg、2.59 mmol) のテトラヒドロフラン (THF) 懸濁液 (3 ml) に (2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン) - 1, 4-ジイル-ビス (メタンホスホン酸ジエチルエステル) (47.6 mg、0.105 mmol) を加え、室温下、10 分攪拌した。この混合物に、(4-N-メトキシフェニル-N-フェニルアミノ) ベンズアルデヒド (108 mg、0.356 mmol) を加えて室温下、5 時間攪拌した。得られた混合物に、メタノール (0.5 ml) を加えた後、飽和塩化アンモニウム水溶液を加え、酢酸エチルで 3 回抽出した。

【0223】生じた有機層を水、飽和食塩水で洗浄、無水硫酸ナトリウムで乾燥、ろ過した。ろ液を減圧下、濃

縮し、得られた残渣をカラムクロマトグラフィー (シリカゲル、展開溶液: ヘキサン/酢酸エチル = 5/1) で精製し、生成物 ((40) - 1) (66.9 mg、収率 85%) を黄橙色結晶として得た。なお、この生成物の同定は ^1H NMR 及び FAB-MS 測定により行った。

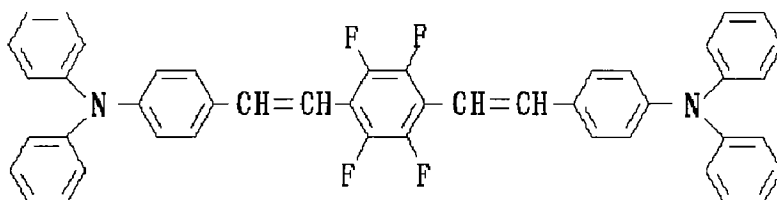
【0224】この生成物の THF 溶液の可視吸収極大波長は 438 nm、蛍光発光波長は 542 nm であった。

【0225】実施例 21

<1, 4-ビス [2- [4- (N-ジフェニル) アミノフェニル] エテニル] -2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン (構造式 (40) - 2) の合成例>

【0226】

【化 270】



【0227】水素化ナトリウム（60%ミネラルオイル懸濁状、153mg、3.84mmol）、（2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン）-1, 4-ジイルービス（メタンホスホン酸ジエチルエステル）（115mg、0.256mmol）、N, N-ジフェニルアミノベンズアルデヒド（245mg、0.897mmol）を用い、実施例20と同様の方法で合成した。

【0228】その結果、生成物（構造式（40）-2）（150mg、収率85%）を黄橙色結晶として得た。なお、この生成物の同定は¹HNMR及びFAB-MS

測定により行った。

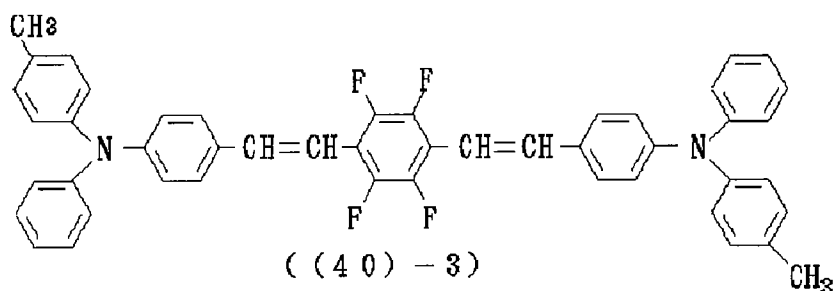
【0229】この生成物のTHF溶液の可視吸収極大波長は428nm、蛍光発光波長は522nmであった。

【0230】実施例22

<1, 4-ビス〔2-〔4-（N-4-メチルフェニル-N-フェニル）アミノフェニル〕エテニル〕-2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン（構造式（40）-3）の合成例>

【0231】

【化271】



【0232】水素化ナトリウム（60%ミネラルオイル懸濁状、160mg、4.01mmol）、（2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン）-1, 4-ジイルービス（メタンホスホン酸ジエチルエステル）（90.3mg、0.201mmol）、〔4-（N-4-メチルフェニル）-N-フェニル〕アミノベンズアルデヒド（202mg、0.702mmol）を用い、実施例20と同様の方法で合成した。

【0233】その結果、生成物（構造式（40）-3）（115mg、収率80%）を黄橙色結晶として得た。なお、この生成物の同定は¹HNMR及びFAB-MS

測定により行った。

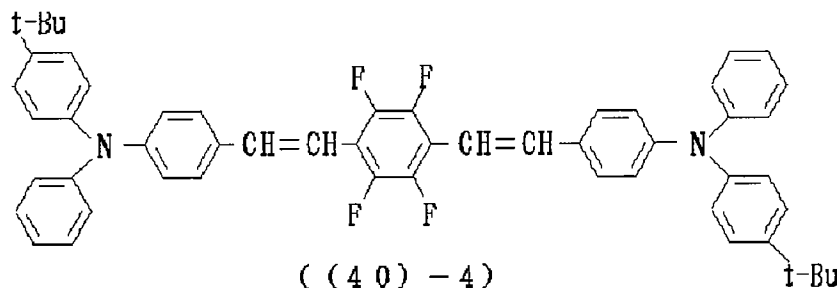
【0234】この生成物のTHF溶液の可視吸収極大波長は433nm、蛍光発光波長は532nmであった。

【0235】実施例23

<1, 4-ビス〔2-〔4-（N-4-tert-butylphenyl-N-フェニル）アミノフェニル〕エテニル〕-2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン（構造式（40）-4）の合成例>

【0236】

【化272】



【0237】水素化ナトリウム（60%ミネラルオイル懸濁状、185mg、4.63mmol）、（2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン）-1, 4-ジイルービス（メタンホスホン酸ジエチルエステル）（69.7mg、0.155mmol）、〔4-（N-tert-butylphenyl-N-フェニル）アミノベンズアルデヒド（203mg、0.619mmol）を用い、実施例20と同様の方法で合成した。

【0238】その結果、生成物（構造式（40）-4）（74.3mg、収率60%）を黄橙色結晶として得た。なお、この生成物の同定は¹HNMR及びFAB-

MS測定により行った。

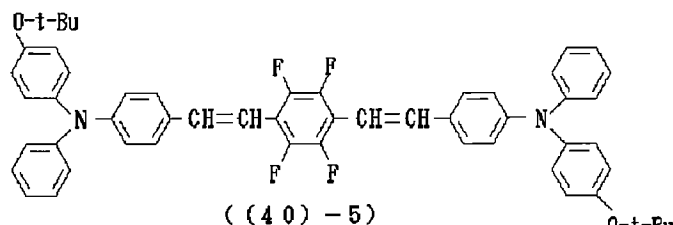
【0239】この生成物のTHF溶液の可視吸収極大波長は433nm、蛍光発光波長は532nmであった。

【0240】実施例24

<1, 4-ビス〔2-〔4-（N-4-tert-butylphenyl-N-フェニル）アミノフェニル〕エテニル〕-2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン（構造式（40）-5）の合成例>

【0241】

【化273】



【0242】水素化ナトリウム（60%ミネラルオイル懸濁状、113mg、2.83mmol）、（2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン）-1, 4-ジイルービス（メタンホスホン酸ジエチルエステル）（45.5mg、0.101mmol）、〔N-4-tert-ブトキシフェニル〕-N-フェニル〕アミノベンズアルデヒド（132mg、0.385mmol）を用い、実施例20と同様の方法で合成した。

【0243】その結果、生成物（構造式（40）-5）（54.8mg、収率65%）を黄橙色結晶として得た。なお、この生成物の同定は¹HNMR及びFAB-

MS測定により行った。

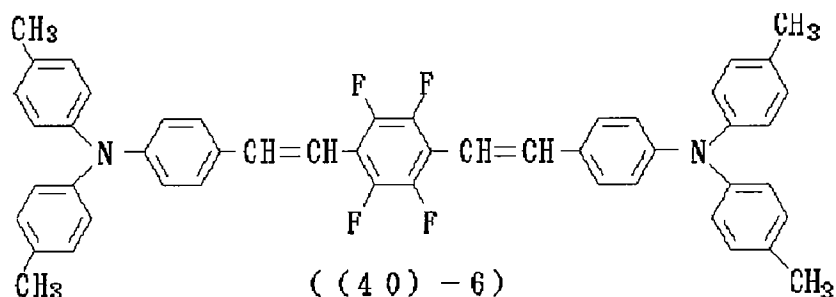
【0244】この生成物のTHF溶液の可視吸収極大波長は435nm、蛍光発光波長は537nmであった。

【0245】実施例25

<1, 4-ビス〔2-〔4-N, N-ビス（4-メチルフェニル）アミノフェニル〕エテニル〕-2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン（構造式（40）-6）の合成例>

【0246】

【化274】



【0247】水素化ナトリウム（60%ミネラルオイル懸濁状、237mg、5.78mmol）、（2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン）-1, 4-ジイルービス（メタンホスホン酸ジエチルエステル）（260mg、0.578mmol）、〔ビス-N-（4-メチルフェニル）〕アミノベンズアルデヒド（522mg、1.73mmol）を用い、実施例20と同様の方法で合成した。

【0248】その結果、生成物（構造式（40）-6）（241mg、収率56%）を黄橙色結晶として得た。なお、この生成物の同定は¹HNMR及びFAB-MS

測定により行った。

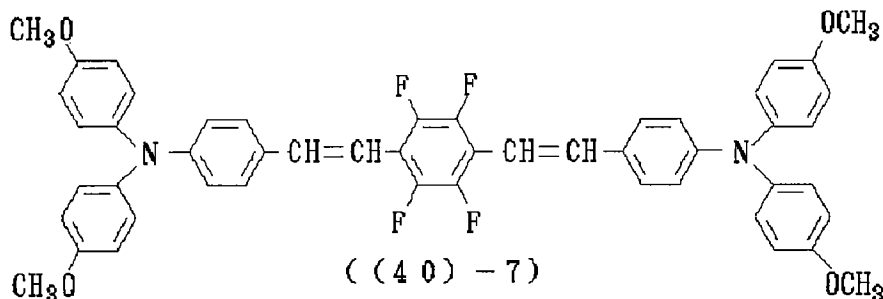
【0249】この生成物のTHF溶液の可視吸収極大波長は440nm、蛍光発光波長は537nmであった。

【0250】実施例26

<1, 4-ビス〔2-〔4-N, N-ビス（4-メトキシフェニル）アミノフェニル〕エテニル〕-2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン（構造式（40）-7）の合成例>

【0251】

【化275】



【0252】水素化ナトリウム（60%ミネラルオイル懸濁状、186mg、4.65mmol）、（2, 3, 5, 6-テトラフルオロベンゼン）-1, 4-ジイルービス（メタンホスホン酸ジエチルエステル）（110mg、0.245mmol）、〔ビス-N-（4-メトキ

0.759mmol）を用い、実施例20と同様の方法で合成した。

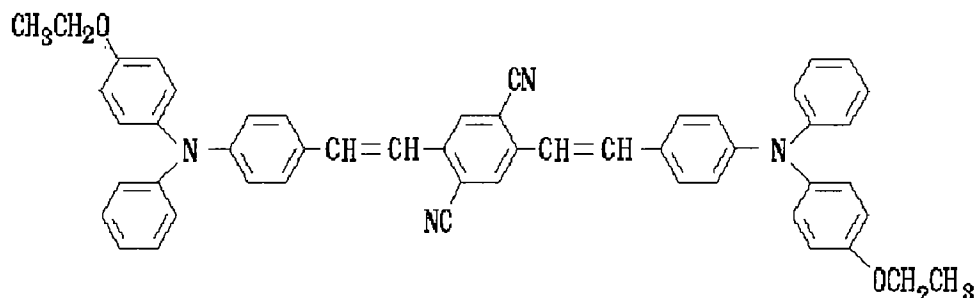
【0253】その結果、生成物（構造式（40）-7）（118mg、収率62%）を黄橙色結晶として得た。なお、この生成物の同定は¹HNMR及びFAB-MS

【0254】この生成物のTHF溶液の可視吸収極大波長は446nm、蛍光発光波長は560nmであった。

【0255】実施例27

本実施例は、一般式〔I〕の上記化合物のうち、R¹、R⁴に3-エトキシフェニル基を、R⁶、R⁸にシアノ

構造式(16)-1:



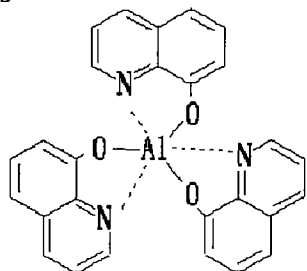
【0257】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により10⁻⁴Pa以下の真空下で上記構造式(16)-1の化合物を例えば50nmの厚さに正孔輸送層(兼発光層)として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0258】さらに、電子輸送材料として下記構造式のAlq₃(トリス(8-キノリノール)アルミニウム)を正孔輸送層に接して蒸着した。Alq₃からなるこの電子輸送層の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0259】

【化277】

Alq₃:



【0260】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例27による図47に示した如き有機電界発光素子を作製した。

【0261】このように作製した実施例27の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、図25に示すように、620nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。分光測定は、大塚電

基を持った下記構造式(16)-1の化合物を正孔輸送性発光材料として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0256】

【化276】

を用いた。また、電圧-輝度測定を行ったところ、図27に示すように、8Vで10000cd/m²の輝度が得られた。

【0262】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで4000時間であった。

【0263】実施例28

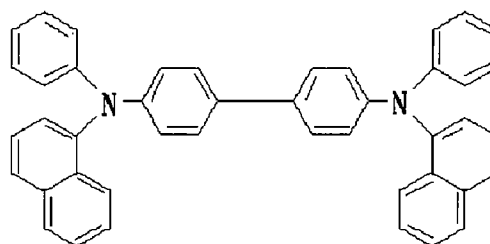
本実施例は、一般式〔I〕の上記化合物のうち、R¹、R⁴に3-エトキシフェニル基を、R⁶、R⁸にシアノ基を持った上記構造式(16)-1の化合物を電子輸送性発光材料として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0264】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により10⁻⁴Pa以下の真空下で、下記構造式のα-NPD(α-ナフチルフェニルジアミン)を例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0265】

【化278】

α-NPD:



(16) - 1の化合物を正孔輸送層に接して蒸着した。上記構造式(16) - 1の化合物からなる電子輸送層(兼発光層)の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0267】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例28による図47に示した如き有機電界発光素子を作製した。

【0268】このように作製した実施例28の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例28と同様に分光測定を行った結果、図26に示すように、620nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、図28に示すように、8Vで8000cd/m²の輝度が得られた。

【0269】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで3500時間であった。

【0270】実施例29

本実施例は、一般式〔I〕の上記化合物のうち、R¹、R⁴に3-エトキシフェニル基を、R⁶、R⁸にシアノ基を持った上記構造式(16) - 1の化合物を発光材料として用い、ダブルヘテロ層構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0271】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により10⁻⁴Pa以下の真空下で、上記構造式のα-NPDを例えば30nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0272】さらに、発光材料として上記構造式(16) - 1の化合物を正孔輸送層に接して蒸着した。上記構造式(16) - 1の化合物からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0273】さらに、電子輸送材料として上記構造式のAlq₃を発光層に接して蒸着した。Alq₃の膜厚を例えば30nmとし、蒸着レートは、0.2nm/秒とした。

【0274】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例30による図48に示した如き有機電界発光素子を作製した。

【0275】このように作製した実施例29の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、620nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで11000cd/m²の輝度が得られた。

【0276】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで5000時間であった。

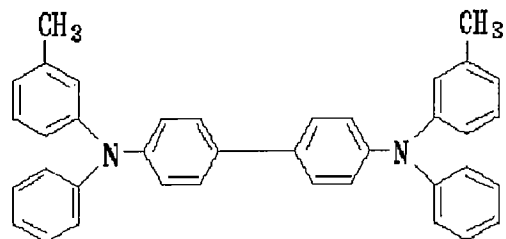
【0277】実施例30

正孔輸送性材料としてα-NPDに替えて下記構造式のTPD(トリフェニルジアミン誘導体)を用いた他は層構成、成膜法とも実施例28に準拠して、有機電界発光素子を作製した。

【0278】

【化279】

TPD:



【0279】本実施例の有機電界発光素子も実施例29と同様の赤色の発光を呈した。分光測定の結果、スペクトルは実施例29の有機電界発光素子のスペクトルと一致した。

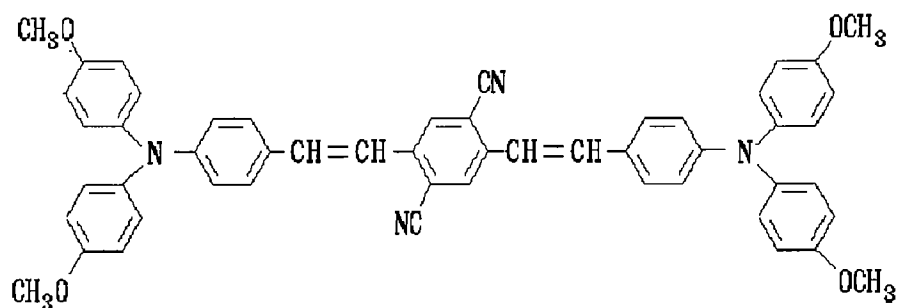
【0280】実施例31

本実施例は、一般式〔II〕の上記化合物のうち、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶、R¹⁷に3-メトキシフェニル基を、R¹⁹、R²¹にシアノ基を持った下記構造式(16) - 2の化合物を正孔輸送性発光材料として用い、これ以外は実施例27と同様にして、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0281】

【化280】

構造式(16) - 2 :



【0282】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、図29に示すように、650nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。分光測定は、大塚電子社製のフォトダイオードアレイを検出器とした分光器を用いた。また、電圧-輝度測定を行ったところ、図31に示すように、9.5Vで1200cd/m²の輝度が得られた。

【0283】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度200cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで1000時間であった。

【0284】実施例32

本実施例は、一般式〔II〕の上記化合物のうち、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶、R¹⁷に3-メトキシフェニル基を、R¹⁹、R²¹にシアノ基を持った上記構造式(16)-2の化合物を電子輸送性発光材料として用い、これ以外は実施例28と同様にして、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0285】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例28と同様に分光測定を行った結果、図30に示すように、650nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、図32に示すように、10.5Vで600cd/m²の輝度が得られた。

【0286】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度200cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで700時間であった。

【0287】実施例33

本実施例は、一般式〔II〕の上記化合物のうち、R¹⁴、

R¹⁵、R¹⁶、R¹⁷に3-メトキシフェニル基を、R¹⁹、R²¹にシアノ基を持った上記構造式(16)-2の化合物を発光材料として用い、これ以外は実施例29と同様にして、ダブルヘテロ層構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0288】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、650nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。電圧-輝度測定を行ったところ、8.5Vで1800cd/m²の輝度が得られた。

【0289】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度200cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで1500時間であった。

【0290】実施例34

正孔輸送性材料としてα-NPDに替えて上記構造式のTPD(トリフェニルジアミン誘導体)を用いた他は層構成、成膜法とも実施例32に準拠して、有機電界発光素子を作製した。

【0291】本実施例の有機電界発光素子も実施例32と同様の赤色の発光を呈した。分光測定の結果、スペクトルは実施例33の有機電界発光素子のスペクトルと一致した。

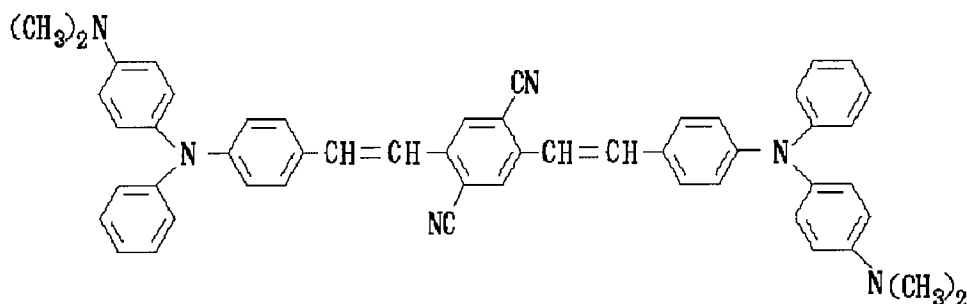
【0292】実施例35

本実施例は、一般式〔III〕の上記化合物のうち、R²⁷、R³⁰に3-ジメチルアミノフェニル基を、R³²、R³⁴にシアノ基を持った下記構造式(16)-3の化合物を正孔輸送性発光材料として用い、これ以外は実施例27と同様にして、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0293】

【化281】

構造式 (16) - 3 :



【0294】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、図33に示すように、640nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。分光測定は、大塚電子社製のフォトダイオードアレイを検出器とした分光器を用いた。また、電圧-輝度測定を行ったところ、図35に示すように、8Vで6000cd/m²の輝度が得られた。

【0295】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで3800時間であった。

【0296】実施例36

本実施例は、一般式〔III〕の上記化合物のうち、R²⁷、R³⁰に3-ジメチルアミノフェニル基を、R³²、R³⁴にシアノ基を持った上記構造式(16)-3の化合物を電子輸送性発光材料として用い、これ以外は実施例28と同様にして、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0297】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例28と同様に分光測定を行った結果、図34に示すように、640nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、図36に示すように、8Vで5300cd/m²の輝度が得られた。

【0298】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで3200時間であった。

【0299】実施例37

本実施例は、一般式〔III〕の上記化合物のうち、

R²⁷、R³⁰に3-ジメチルアミノフェニル基を、R³²、R³⁴にシアノ基を持った上記構造式(16)-3の化合物を発光材料として用い、これ以外は実施例29と同様にして、ダブルヘテロ層構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0300】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、640nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで6800cd/m²の輝度が得られた。

【0301】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで4500時間であった。

【0302】実施例38

正孔輸送性材料としてα-NPDに替えて上記構造式のTPD(トリフェニルジアミン誘導体)を用いた他は層構成、成膜法とも実施例36に準拠して、有機電界発光素子を作製した。

【0303】本実施例の有機電界発光素子も実施例36と同様の赤色の発光を呈した。分光測定の結果、スペクトルは実施例36の有機電界発光素子のスペクトルと一致した。

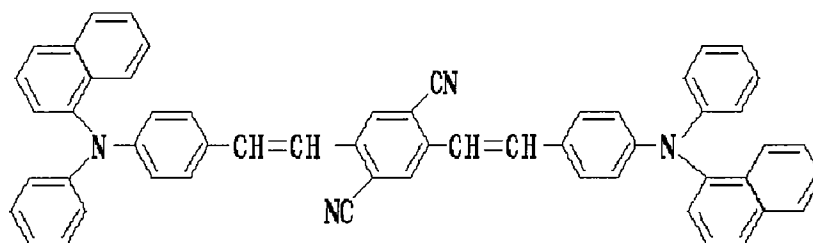
【0304】実施例39

本実施例は、一般式〔IV〕の上記化合物のうち、R⁴¹、R⁴²に無置換フェニル基を、R⁴⁰、R⁴³に無置換ナフチル基を、R⁴⁵、R⁴⁷にシアノ基を持った下記構造式(16)-4の化合物を正孔輸送性発光材料として用い、これ以外は実施例27と同様にして、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0305】

【化282】

構造式(16) - 4 :



【0306】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は黄色であり、分光測定を行った結果、図37に示すように、578nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。分光測定は、大塚電子社製のフォトダイオードアレイを検出器とした分光器を用いた。また、電圧-輝度測定を行ったところ、図40に示すように、8Vで6500cd/m²の輝度が得られた。

【0307】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで4000時間であった。

【0308】実施例40

本実施例は、一般式〔IV〕の上記化合物のうち、R⁴¹、R⁴²に無置換フェニル基を、R⁴⁰、R⁴³に無置換ナフチル基を、R⁴⁵、R⁴⁷にシアノ基を持った上記構造式(16) - 4の化合物を電子輸送性発光材料として用い、これ以外は実施例28と同様にして、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0309】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は黄色であり、実施例39と同様に分光測定を行った結果、図38に示すように、578nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、図41に示すように、8Vで5900cd/m²の輝度が得られた。

【0310】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで3500時間であった。

【0311】実施例41

本実施例は、一般式〔IV〕の上記化合物のうち、R⁴¹、R⁴²に無置換フェニル基を、R⁴⁰、R⁴³に無置換ナフチ

ル基を、R⁴⁵、R⁴⁷にシアノ基を持った上記構造式(16) - 4の化合物を発光材料として用い、これ以外は実施例29と同様にして、ダブルヘテロ層構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0312】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は黄色であり、分光測定を行った結果、図39に示すように、578nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。電圧-輝度測定を行ったところ、図42に示すように、8Vで7500cd/m²の輝度が得られた。

【0313】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度300cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで5000時間であった。

【0314】実施例42

正孔輸送性材料としてα-NPDに替えて上記構造式のTPD(トリフェニルジアミン誘導体)を用いた他は層構成、成膜法とも実施例40に準拠して、有機電界発光素子を作製した。

【0315】本実施例の有機電界発光素子も実施例40と同様の黄色の発光を呈した。分光測定の結果、スペクトルは実施例40の有機電界発光素子のスペクトルと一致した。

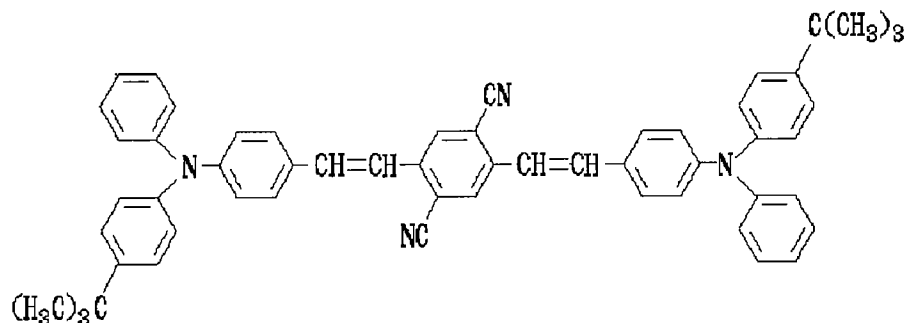
【0316】実施例43

本実施例は、一般式〔I〕の上記化合物のうち、R¹、R⁴に無置換フェニル基を、R²、R³にt-ブチル基を持った下記構造式(16) - 8の化合物を電子輸送性発光材料として用い、これ以外は実施例28と同様にして、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0317】

【化283】

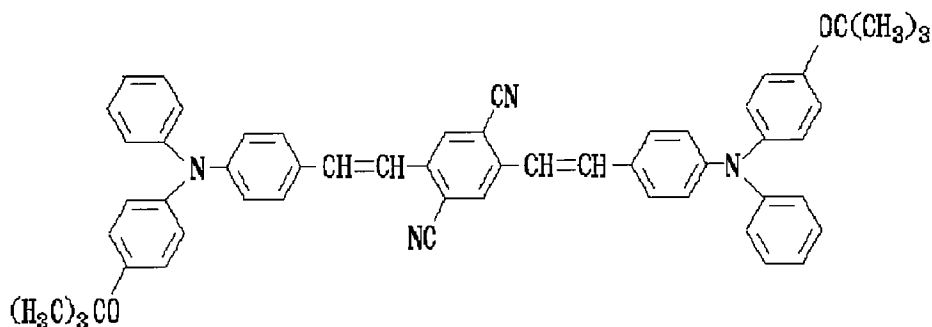
構造式(16)－8：



【0318】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は橙色であり、実施例39と同様に分光測定を行った結果、図43に示すように、580nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧－輝度測定を行ったところ、8Vで300cd/m²の輝度が得られた。

【0319】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。

構造式(16)－9：



【0322】本実施例の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例39と同様に分光測定を行った結果、図44に示すように、628nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧－輝度測定を行ったところ、7.5Vで15cd/m²の輝度が得られた。

【0323】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。

【0324】

【発明の作用効果】本発明の第1及び第2の化合物は、導入される置換基に依存して、黄色～赤色又は緑色～赤色の強い発光を示す有機発光材料として有効に利用することができ、高いガラス転移点及び融点を有する物質であり、耐熱性に優れると共に、電気的、熱的或いは化学的な安定性に優れ、また非晶質でガラス状態を容易に形

【0320】実施例44

本実施例は、前記一般式〔I〕の上記化合物のうち、R¹、R⁴に無置換フェニル基を、R²、R³にターシャリプトキシ基を持った下記構造式(16)－9の化合物を電子輸送性発光材料として用い、これ以外は実施例43と同様にして、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

【0321】

【化284】

ルファス膜を形成することもできる。また、本発明の化合物は、本発明の合成中間体を経て一般的かつ高効率な方法で製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)－1)の¹HNMRスペクトル図である。

【図2】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)－2)の¹HNMRスペクトル図である。

【図3】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)－4)の¹HNMRスペクトル図である。

【図4】本発明の合成中間体としての4-[N,N-ジ(4-メトキシフェニル)アミノ]ベンズアルデヒド(構造式(27)－2)の¹HNMRスペクトル図である。

メトキシフェニル) アニリン (構造式 (36) - 2) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図6】本発明の合成中間体としてのN-(1-フェニル)-N-(4-エトキシフェニル) アニリン (構造式 (36) - 1) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図7】本発明の合成中間体としての2, 5-ジ(プロモメチル) テレフタロニトリル (構造式 (35a)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図8】本発明の合成中間体としてのN-(p-トルイル)-N,N-ジフェニルアミン (構造式 (36) - 6) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図9】本発明の合成中間体としての4-[N-(p-トルイル)-N-フェニルアミノ] ベンズアルデヒド (構造式 (27) - 6) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図10】本発明のビス(アミノスチリル) ベンゼン化合物 (構造式 (16) - 6) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図11】本発明の合成中間体としてのN,N-(p-トルイル-N-フェニルアミン (構造式 (36) - 7) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図12】本発明の合成中間体としての4-[N,N-ジ(p-トルイル) アミノ] ベンズアルデヒド (構造式 (27) - 7) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図13】本発明のビス(アミノスチリル) ベンゼン化合物 (構造式 (16) - 7) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図14】本発明の合成中間体としてのアセタール化合物 (構造式 (53)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図15】本発明の合成中間体としての化合物 (構造式 (55)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図16】本発明の合成中間体としてのアセタール化合物 (構造式 (56)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図17】本発明の合成中間体としてのアルデヒド化合物 (構造式 (57)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図18】本発明のビス(アミノスチリル) ベンゼン化合物 (構造式 (16) - 9) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図19】本発明の合成中間体としてのアミン化合物 (構造式 (61)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図20】本発明の合成中間体としてのアルデヒド化合物 (構造式 (62)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図21】本発明のビス(アミノスチリル) ベンゼン化合物 (構造式 (16) - 8) の ^1H NMRスペクトル図である。

物 (構造式 (64)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図23】本発明の合成中間体としてのアルデヒド化合物 (構造式 (65)) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図24】本発明のビス(アミノスチリル) ベンゼン化合物 (構造式 (16) - 3) の ^1H NMRスペクトル図である。

【図25】本発明の実施例27による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図26】同、実施例28による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図27】同、実施例27による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図28】同、実施例28による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図29】同、実施例31による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図30】同、実施例32による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図31】同、実施例31による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図31】同、実施例32による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図32】同、実施例32による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図33】同、実施例35による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図34】同、実施例36による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図35】同、実施例35による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図36】同、実施例36による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図37】同、実施例39による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図38】同、実施例40による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図39】同、実施例41による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図40】同、実施例39による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図41】同、実施例40による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図42】同、実施例41による有機電界発光素子の電圧-輝度特性図である。

【図43】同、実施例43による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図44】同、実施例44による有機電界発光素子の発

【図 4 5】本発明に基づく有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図 4 6】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図 4 7】同、他の電界発光素子の要部概略断面図である。

【図 4 8】同、他の電界発光素子の要部概略断面図である。

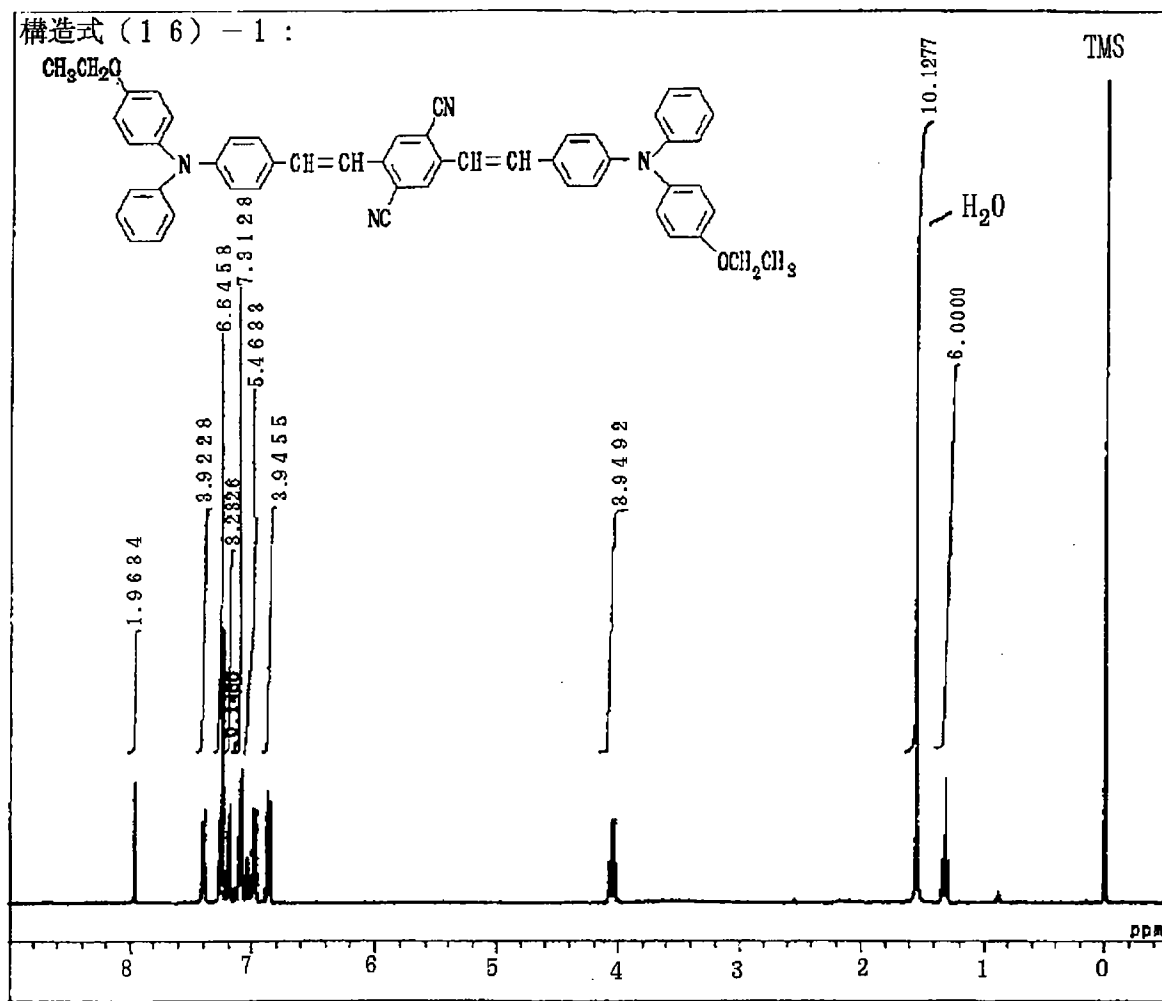
【図 4 9】同、有機電界発光素子を用いたマルチ又はフ

ルカラーの平面ディスプレイの構成図である。

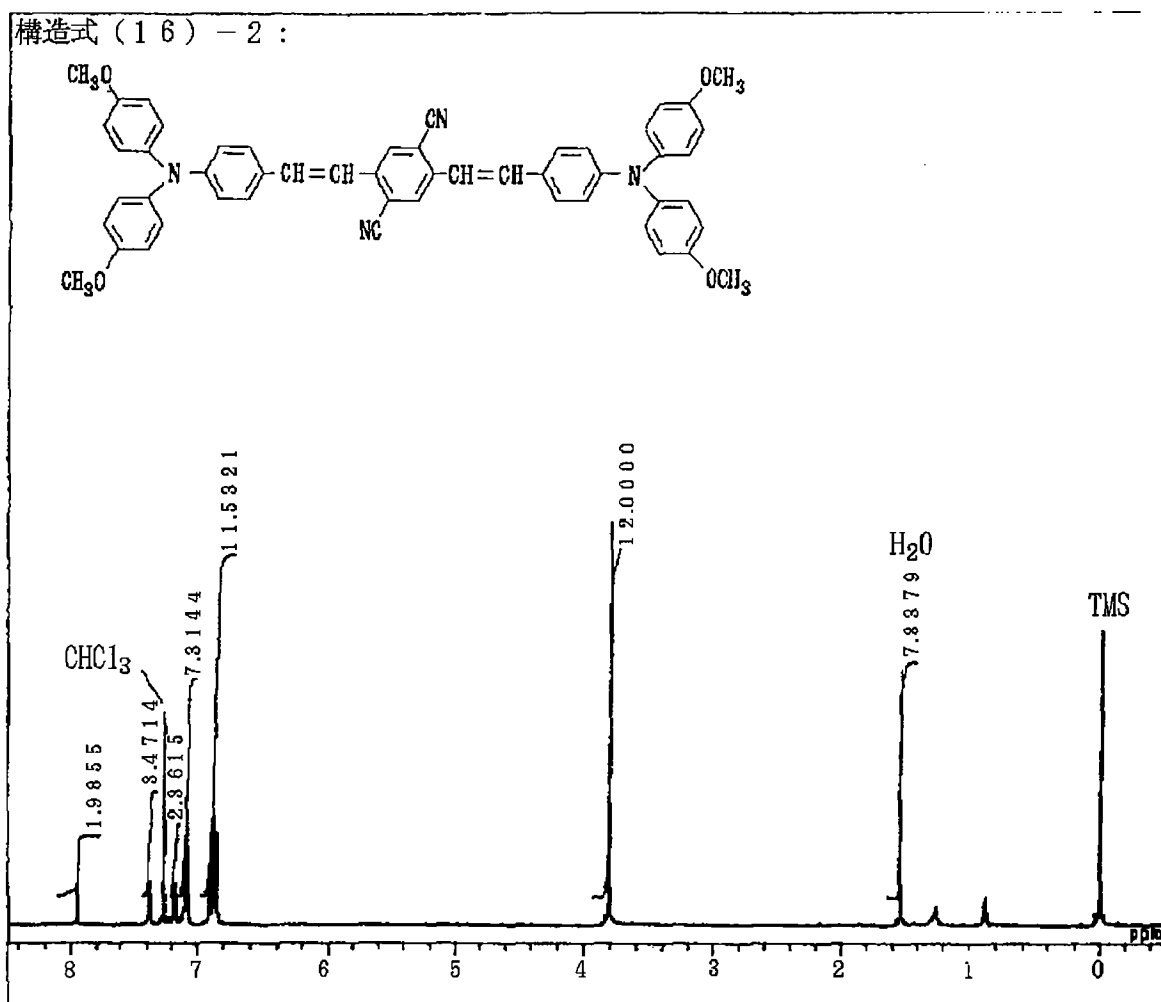
【符号の説明】

1…基板、2…透明電極（陽極）、3…陰極、4…保護膜、5、5 a、5 b…有機層、6…正孔輸送層、7…電子輸送層、8…電源、10…正孔輸送層、11…発光層、12…電子輸送層、14…輝度信号回路、15…制御回路、20…発光光、A、B、C、D…有機電界発光素子

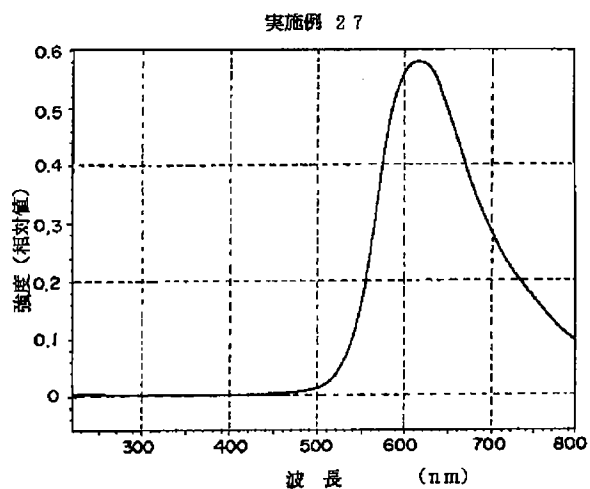
【図 1】



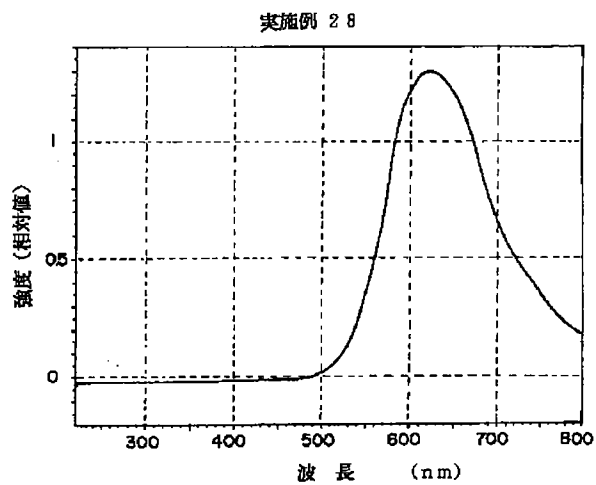
【図2】



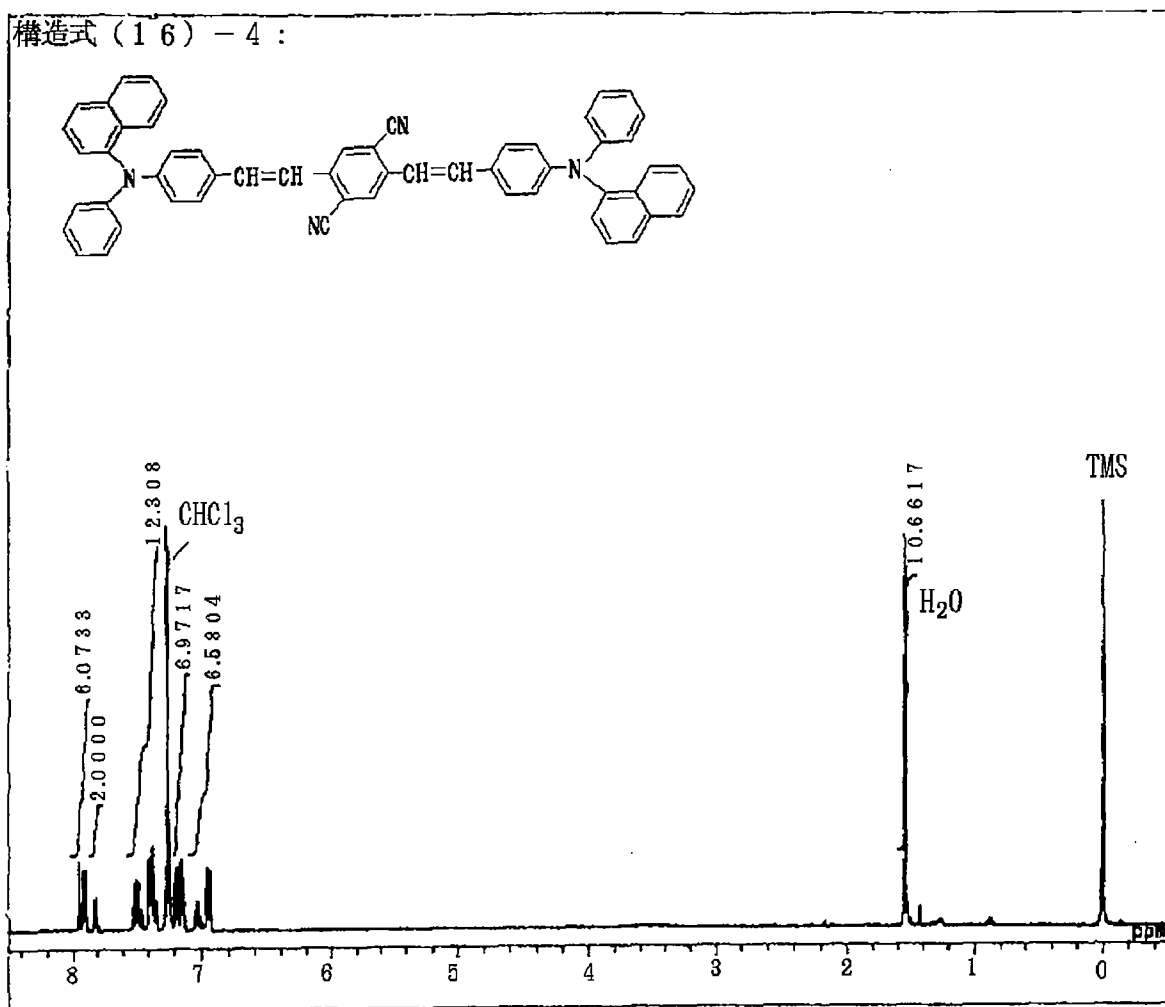
【図25】



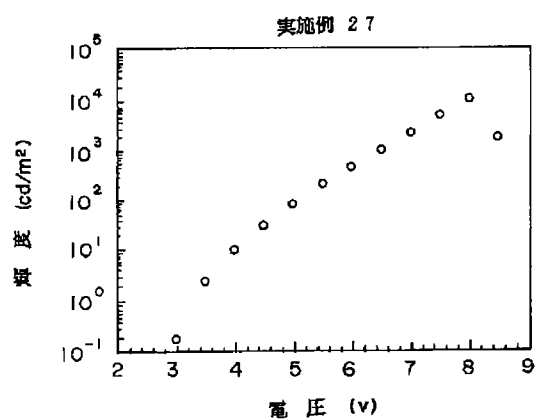
【図26】



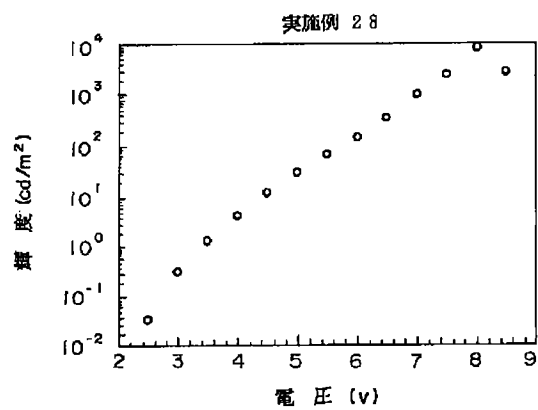
【図3】



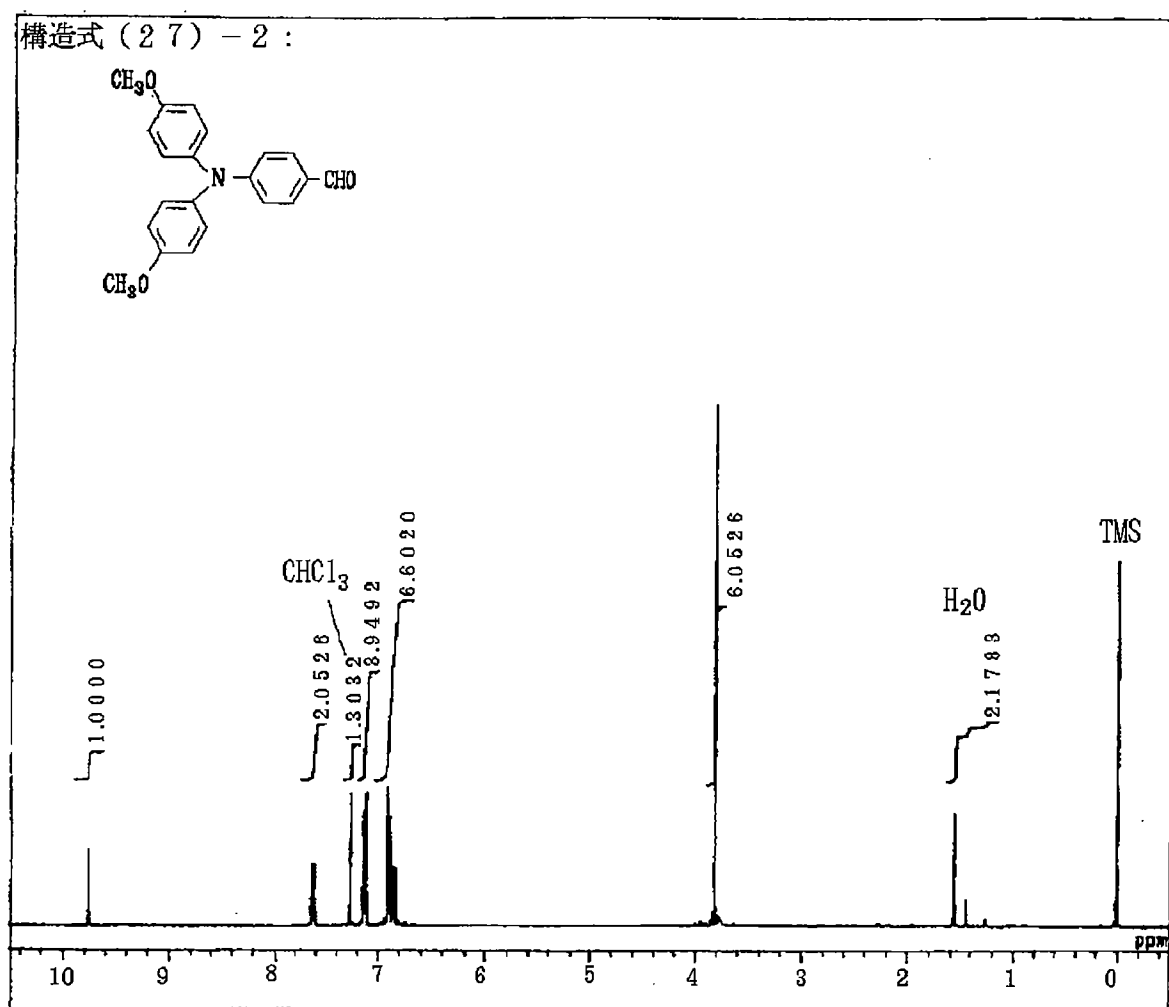
【図27】



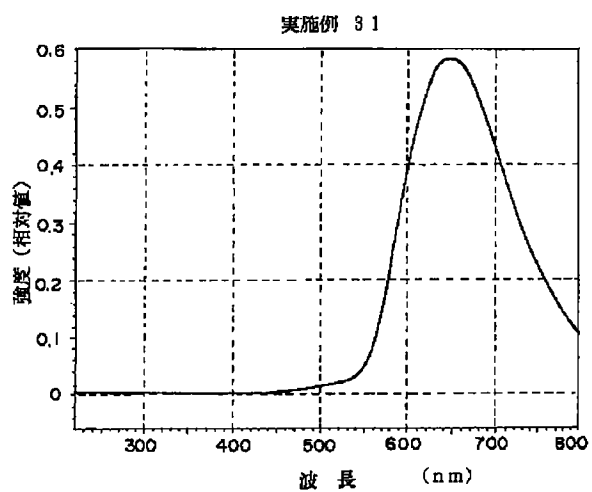
【図28】



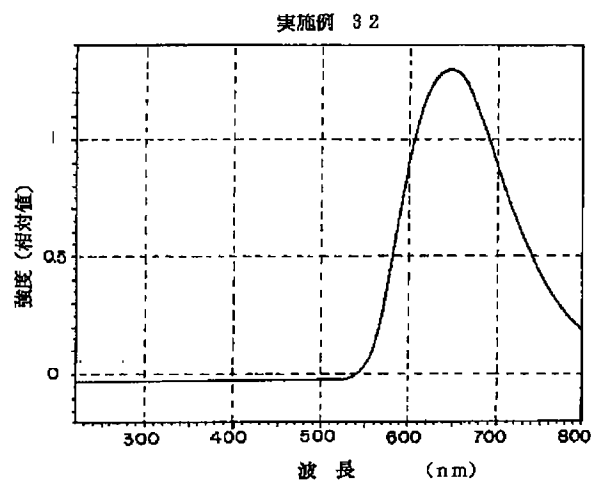
【図 4】



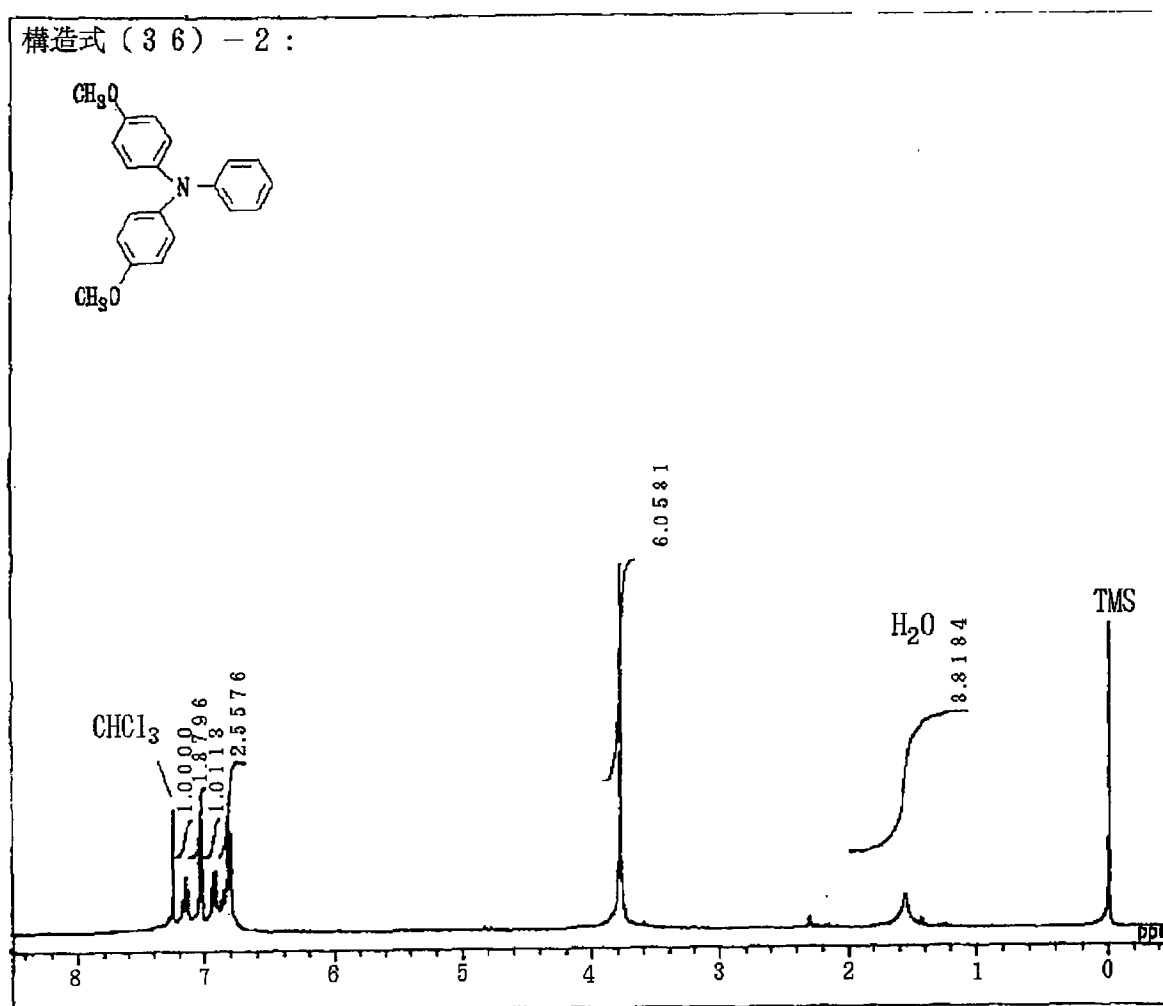
【図 29】



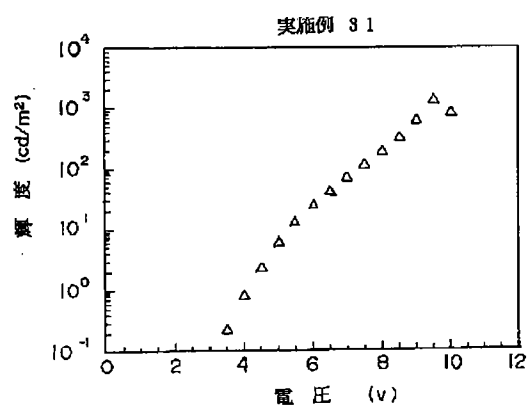
【図 30】



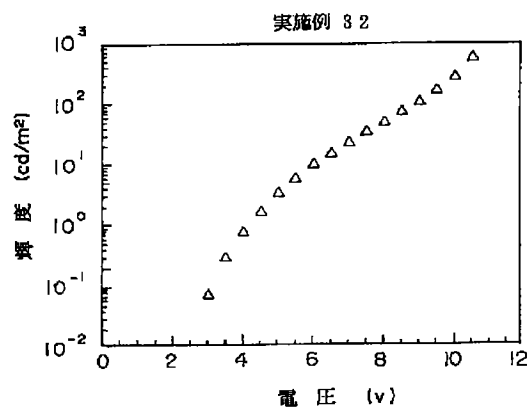
【図5】



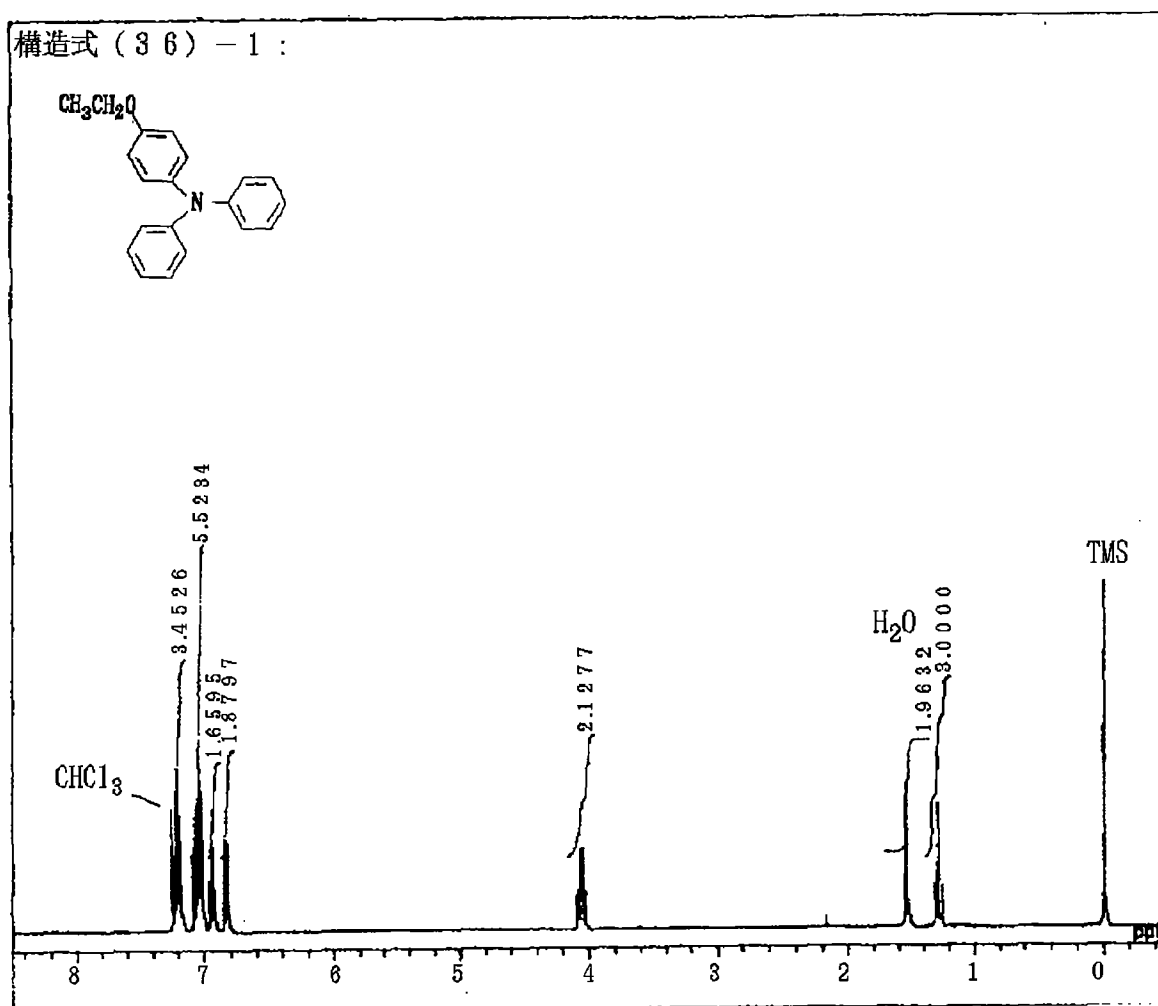
【図31】



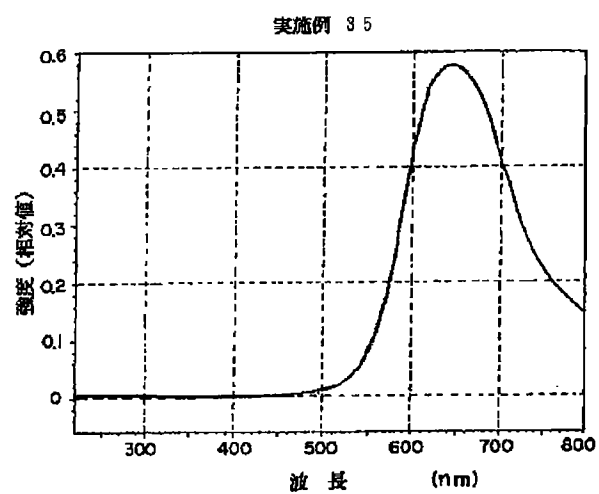
【図32】



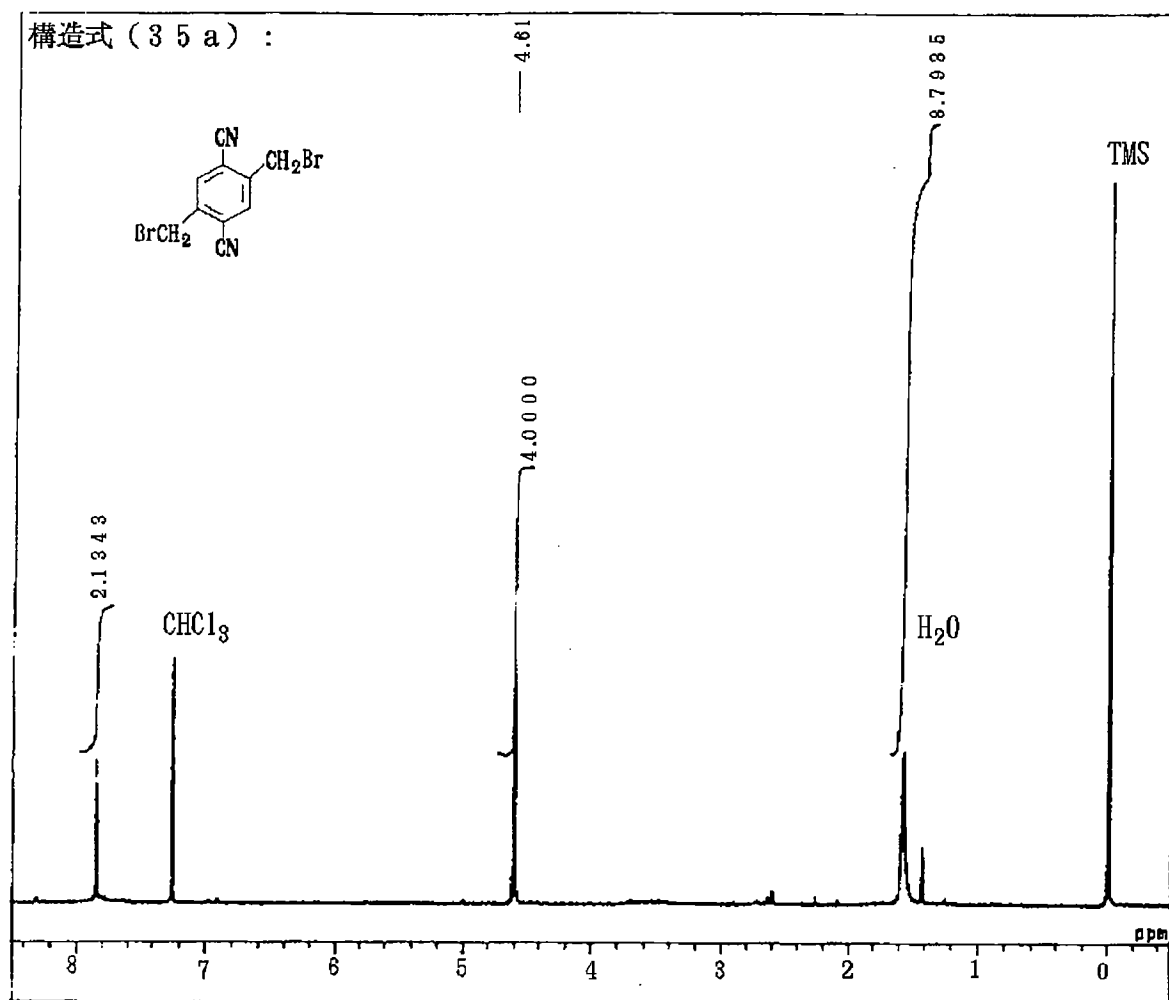
【図6】



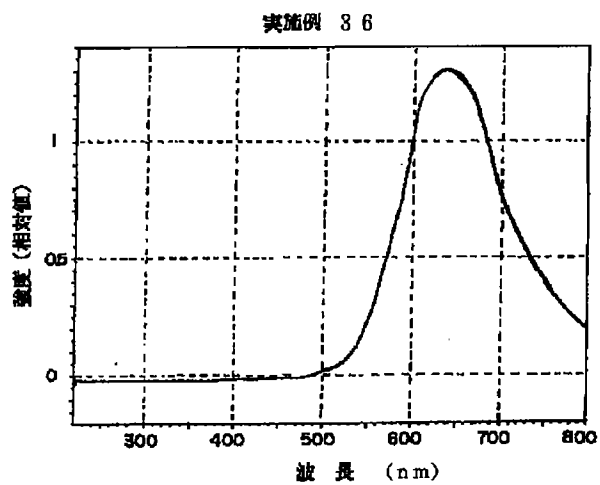
【図33】



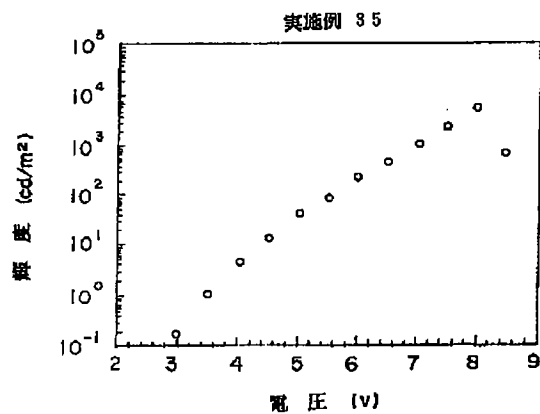
【図 7】

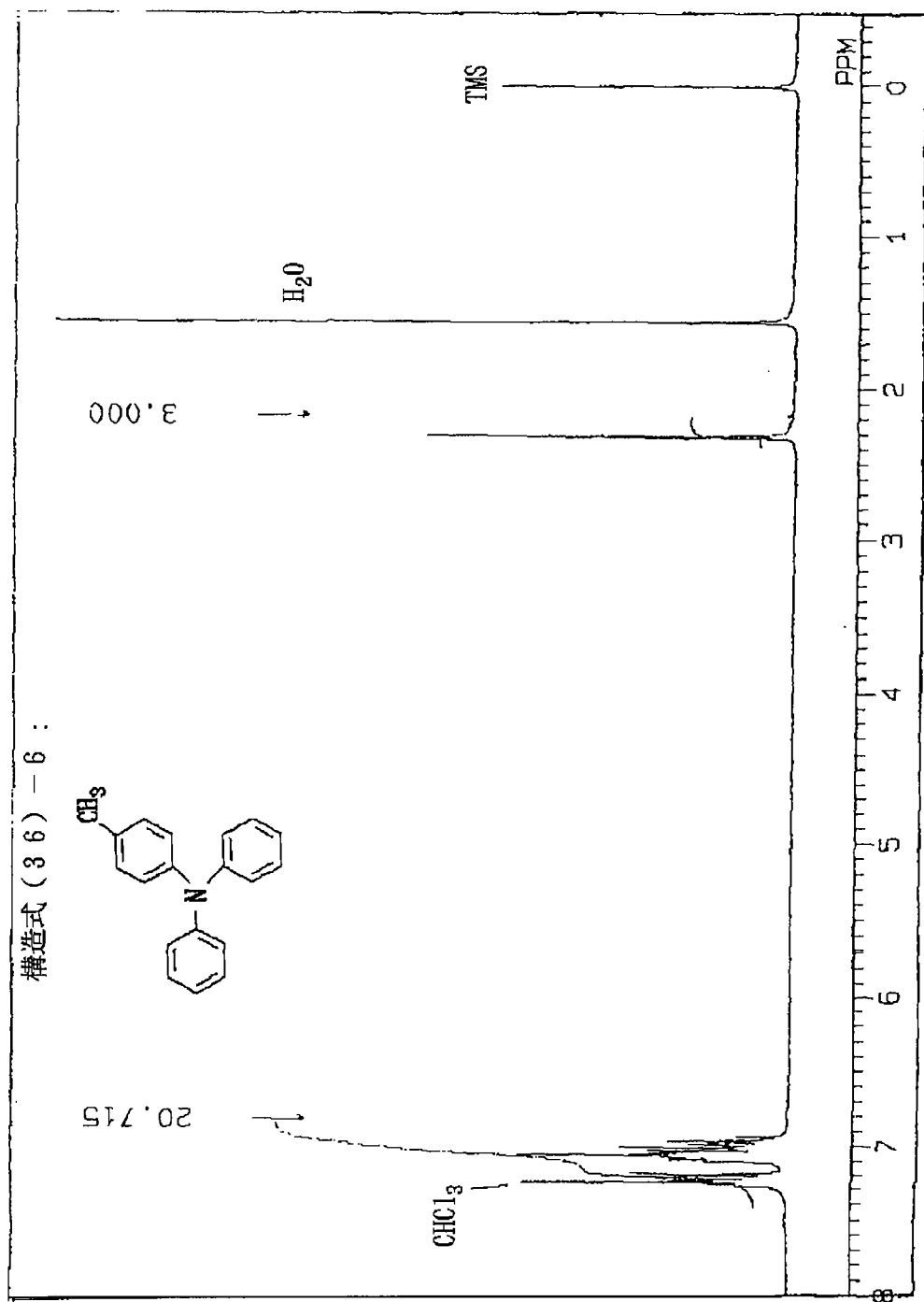


【図 3 4】

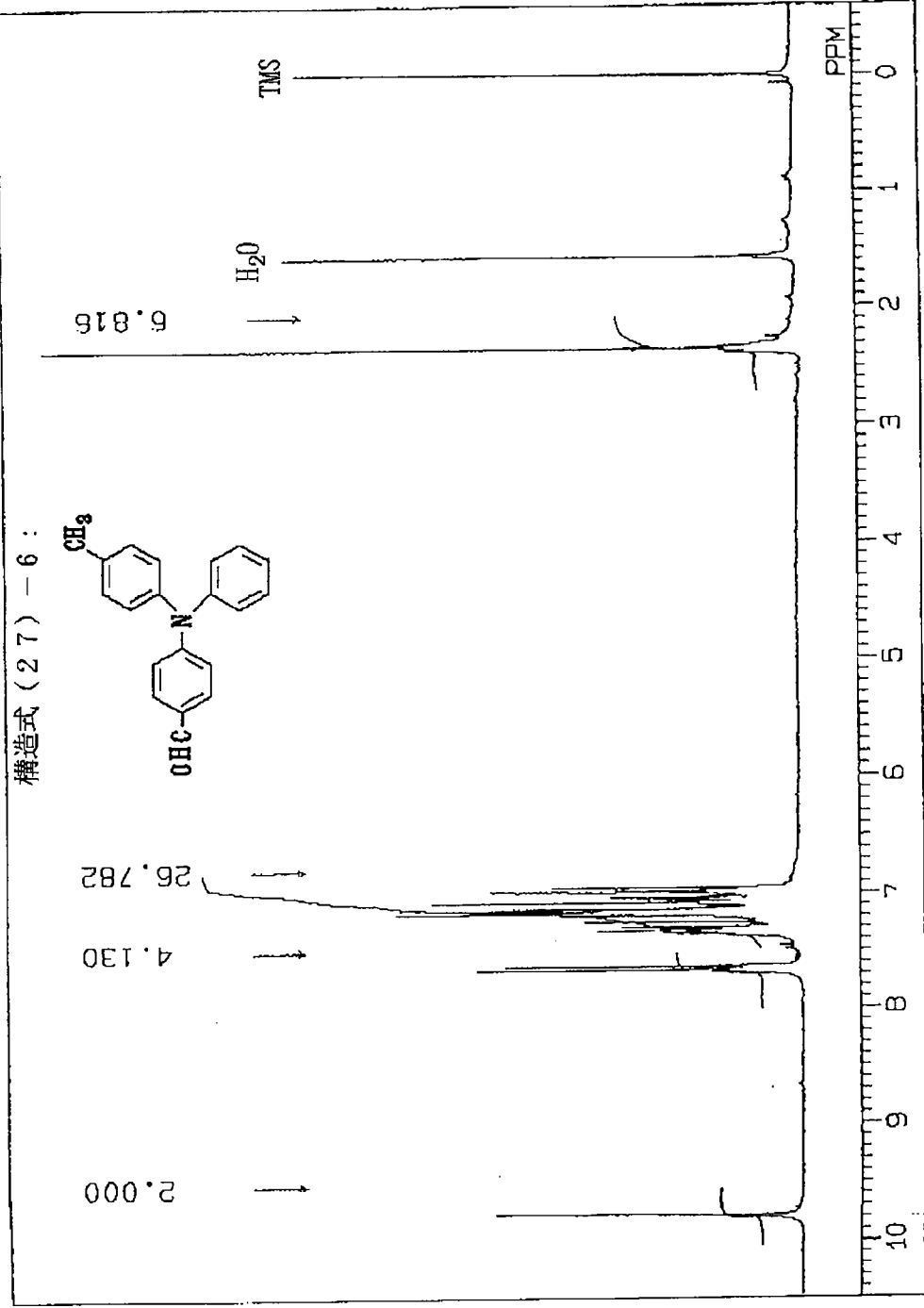


【図 3 5】



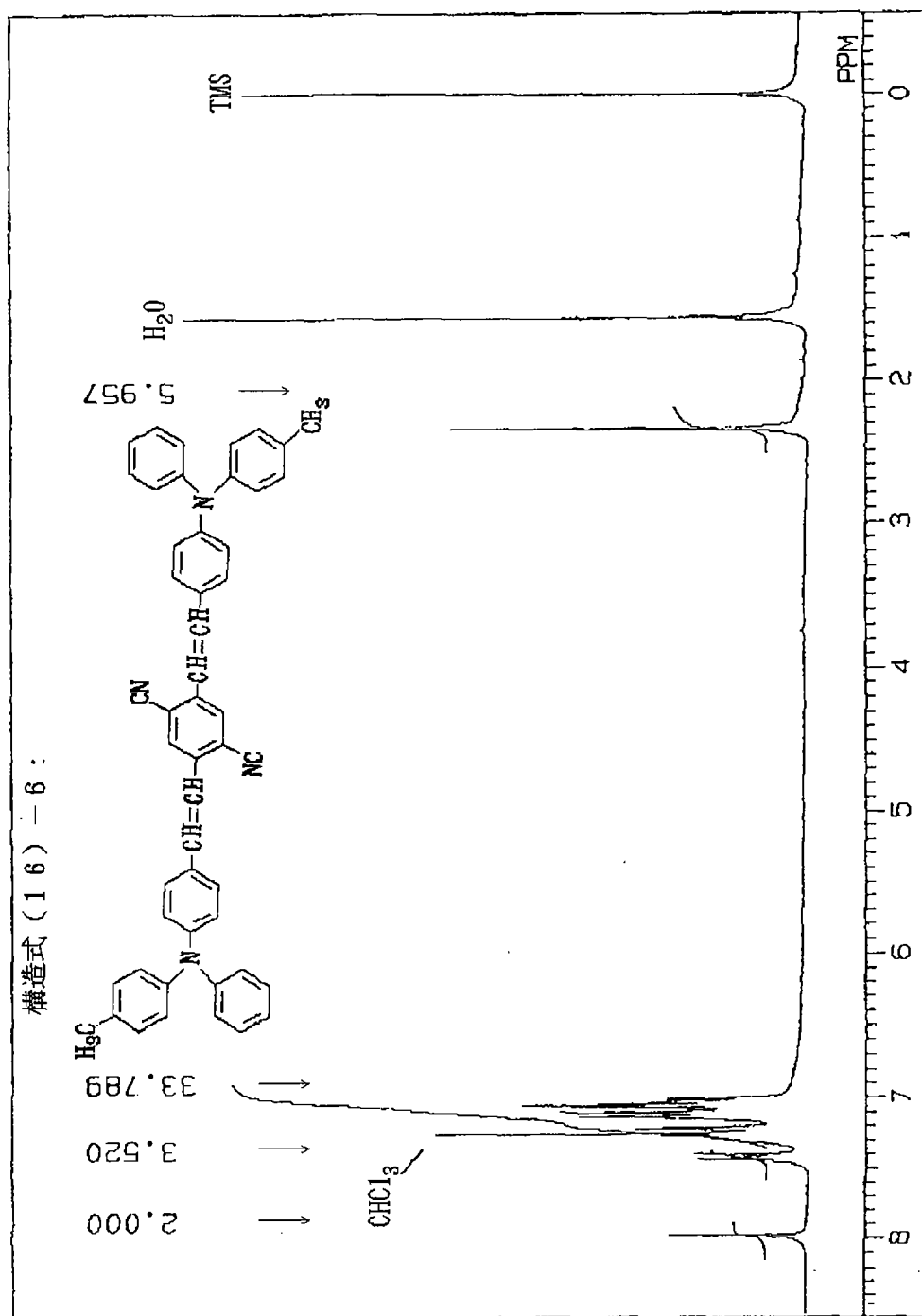


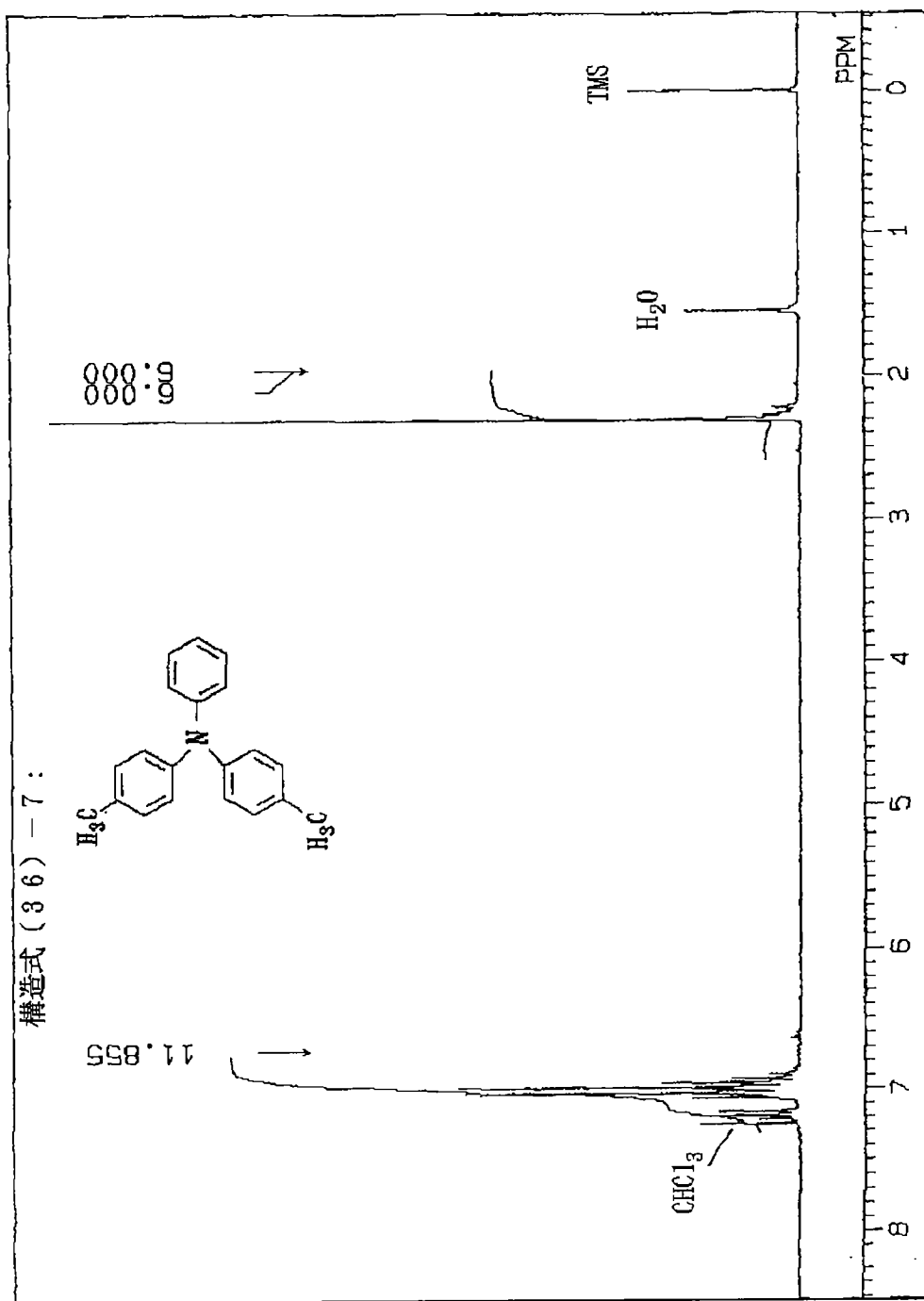
【図8】



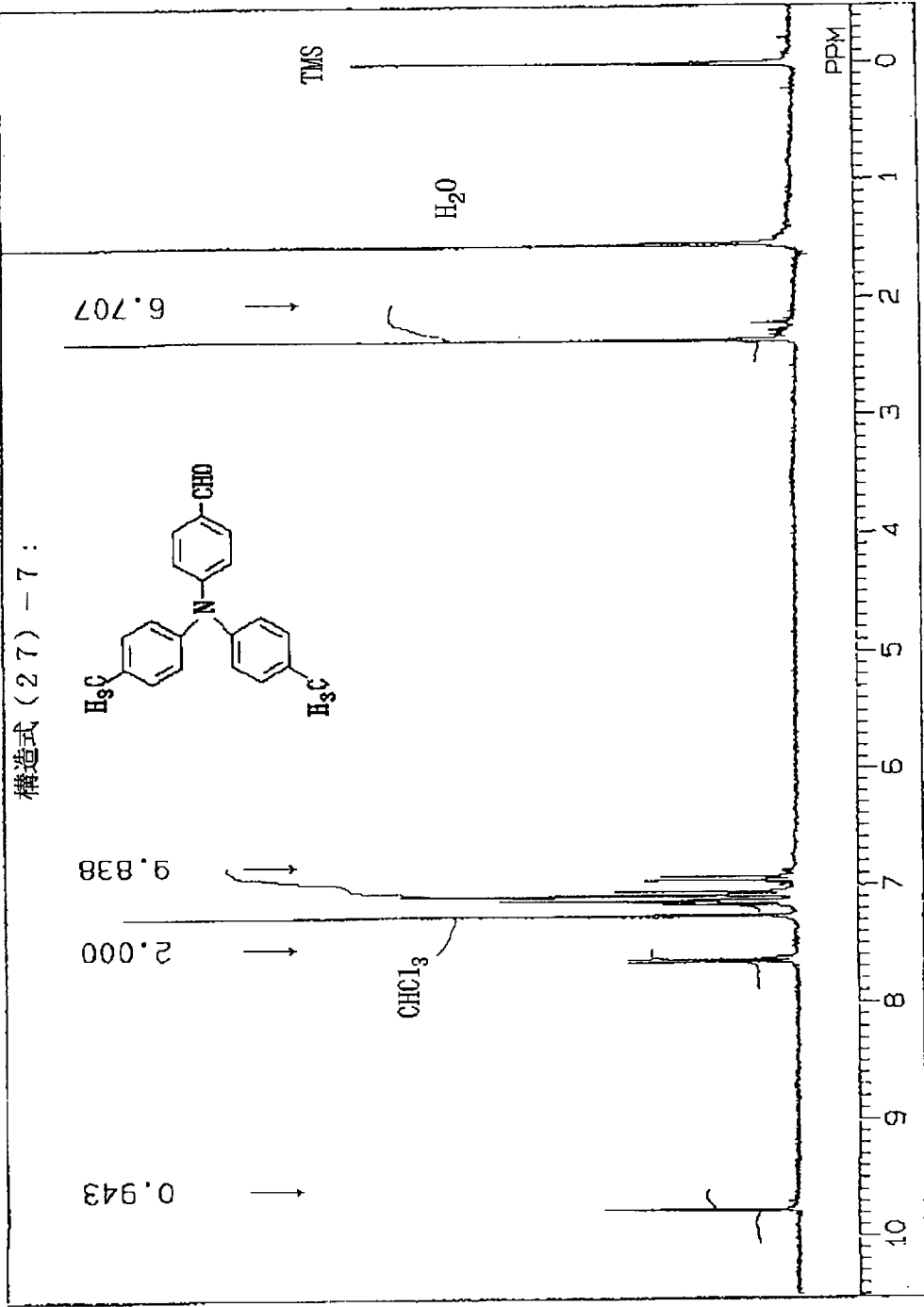
【6】

【図10】



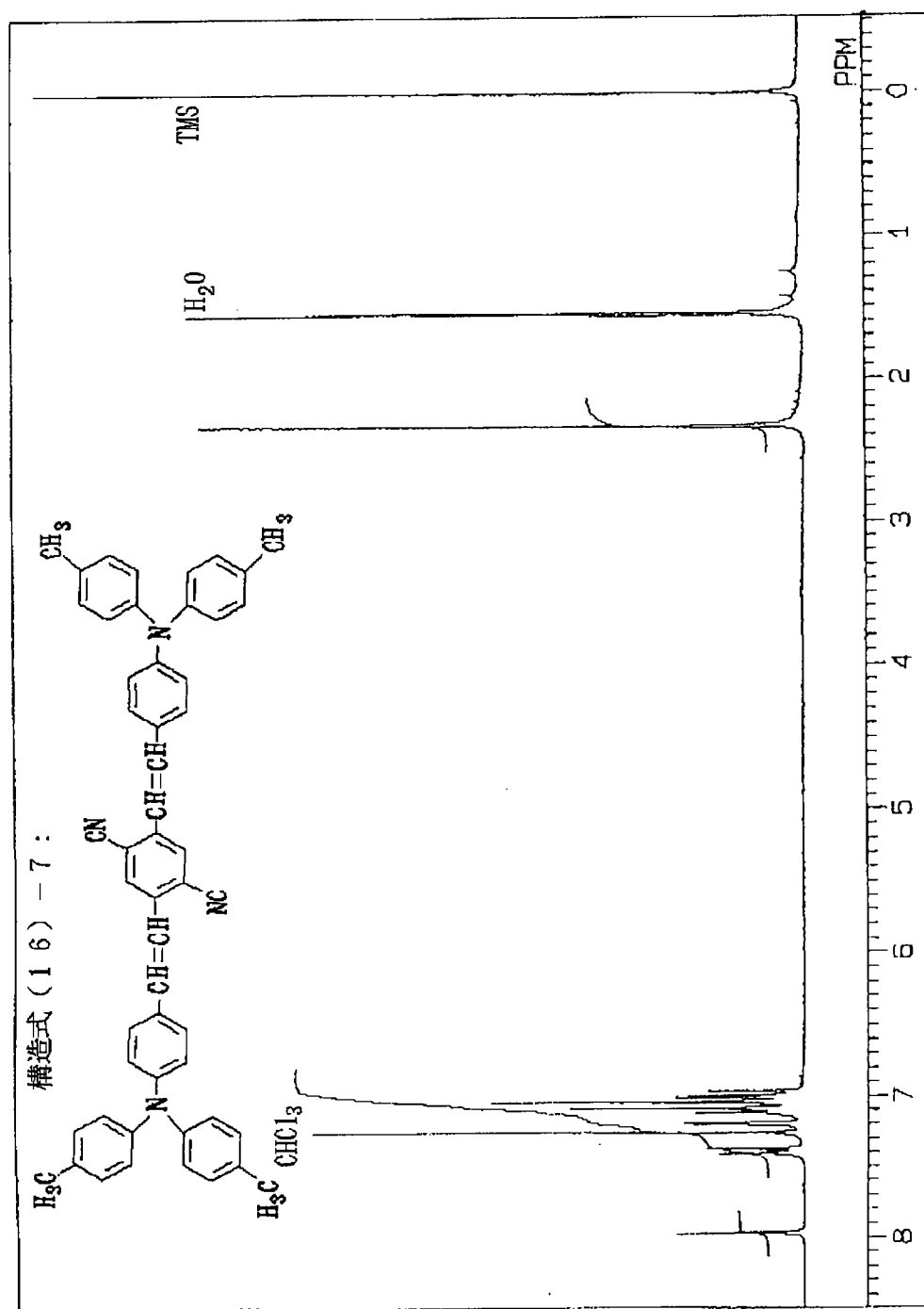


【図 1 1】

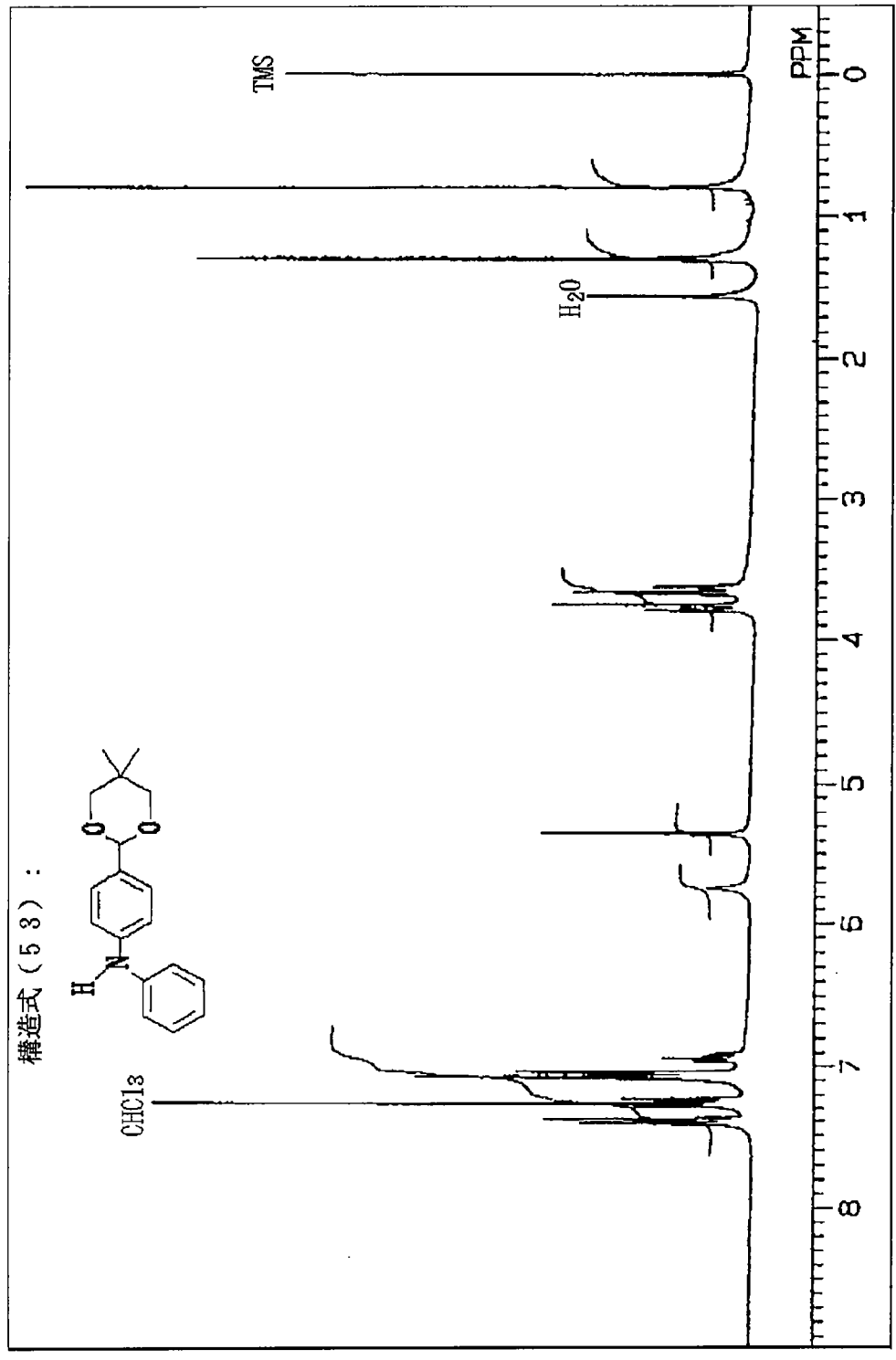


【図12】

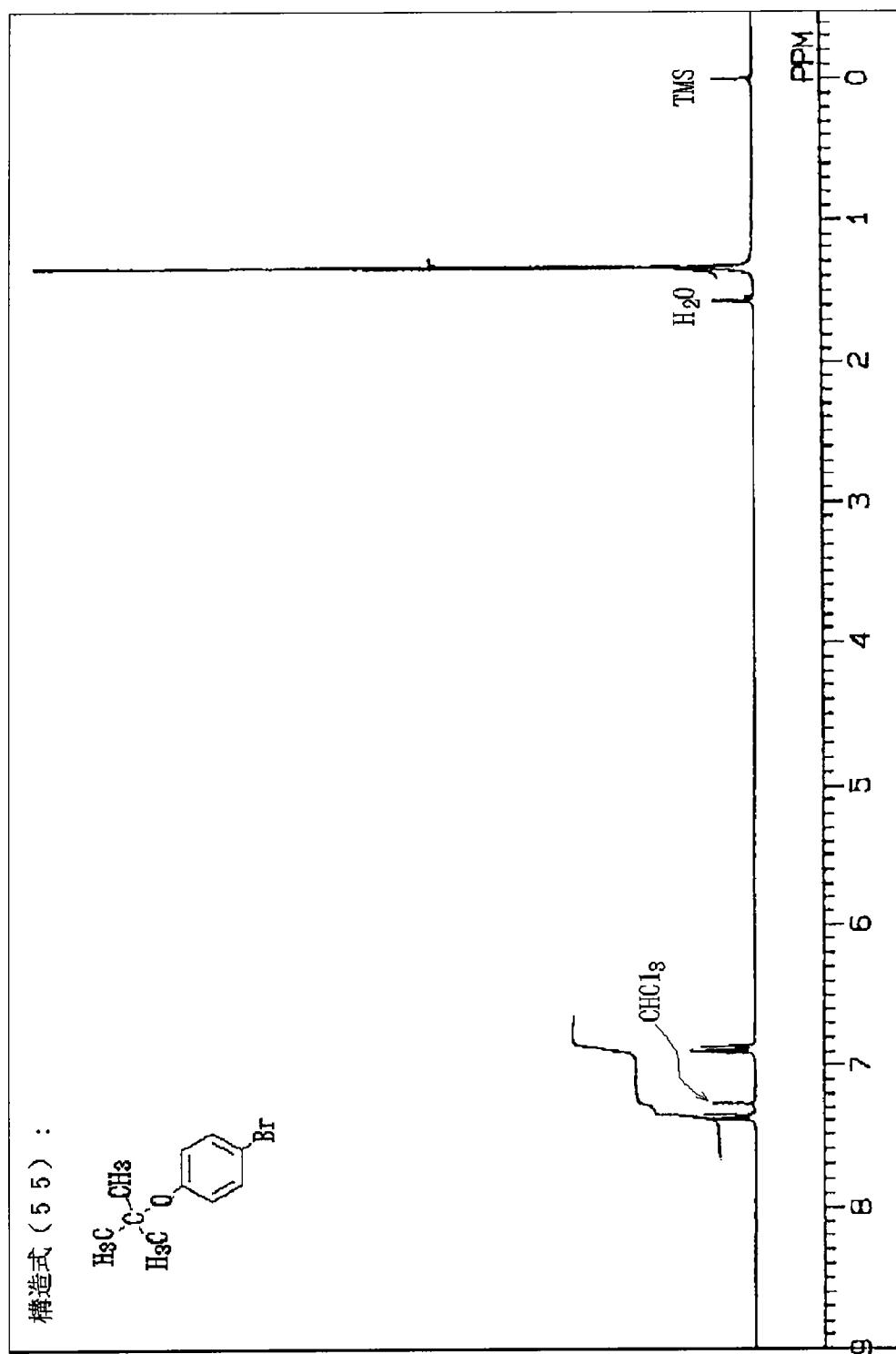
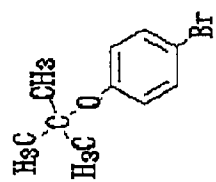
【图13】



【図14】

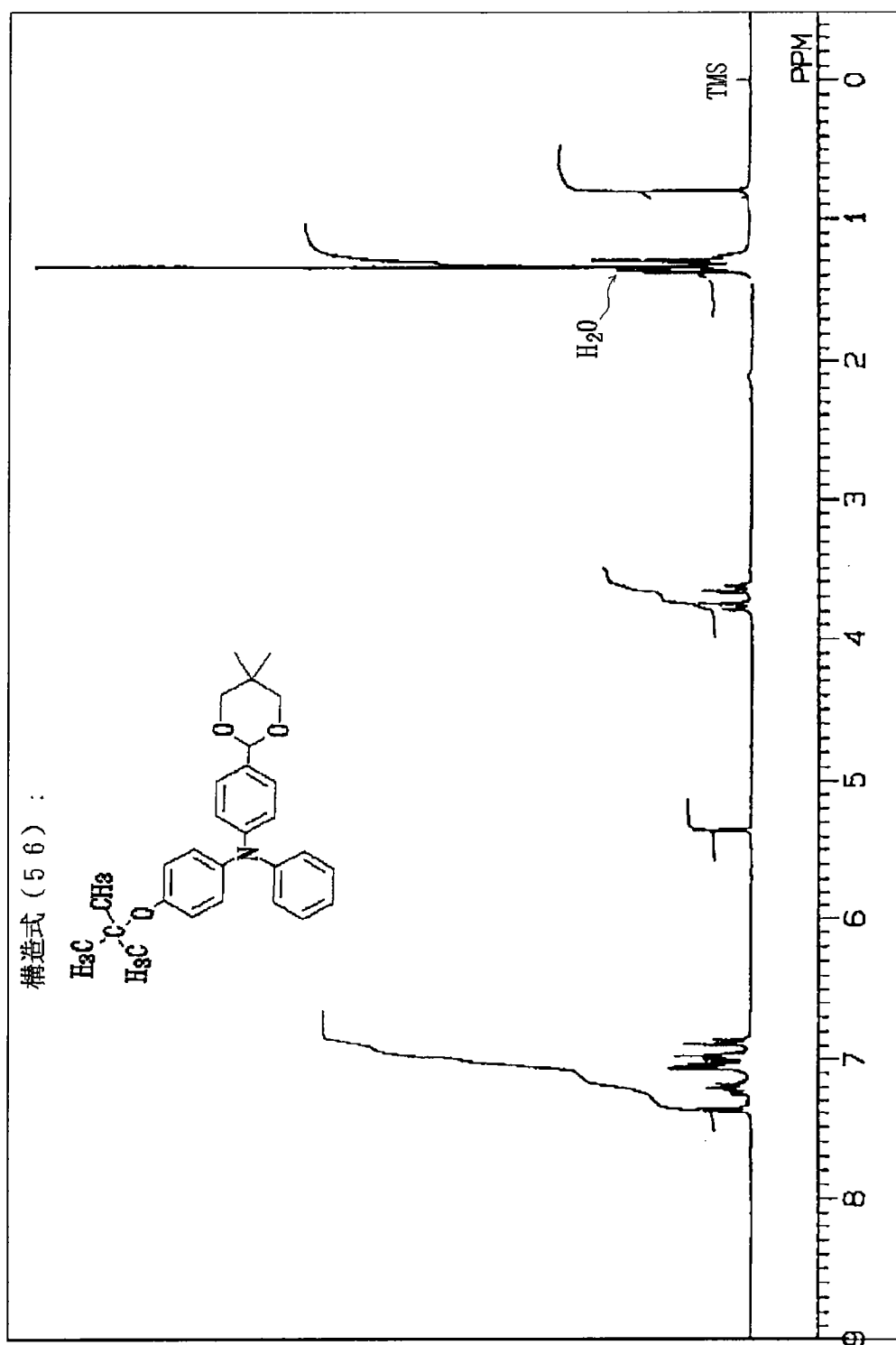


構造式 (55) :

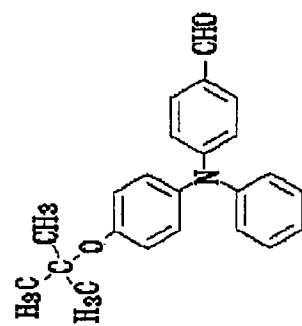


【図15】

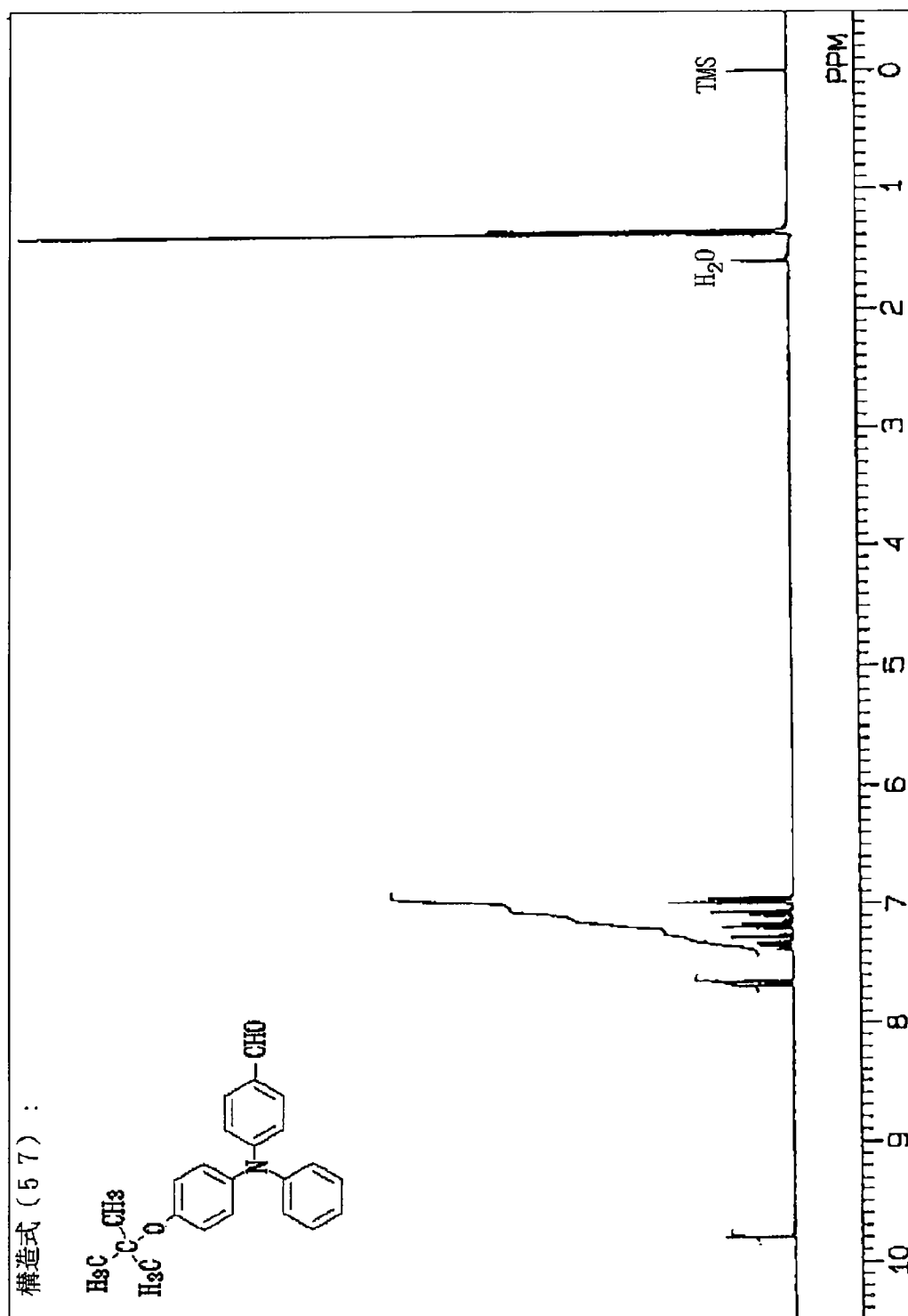
【図16】



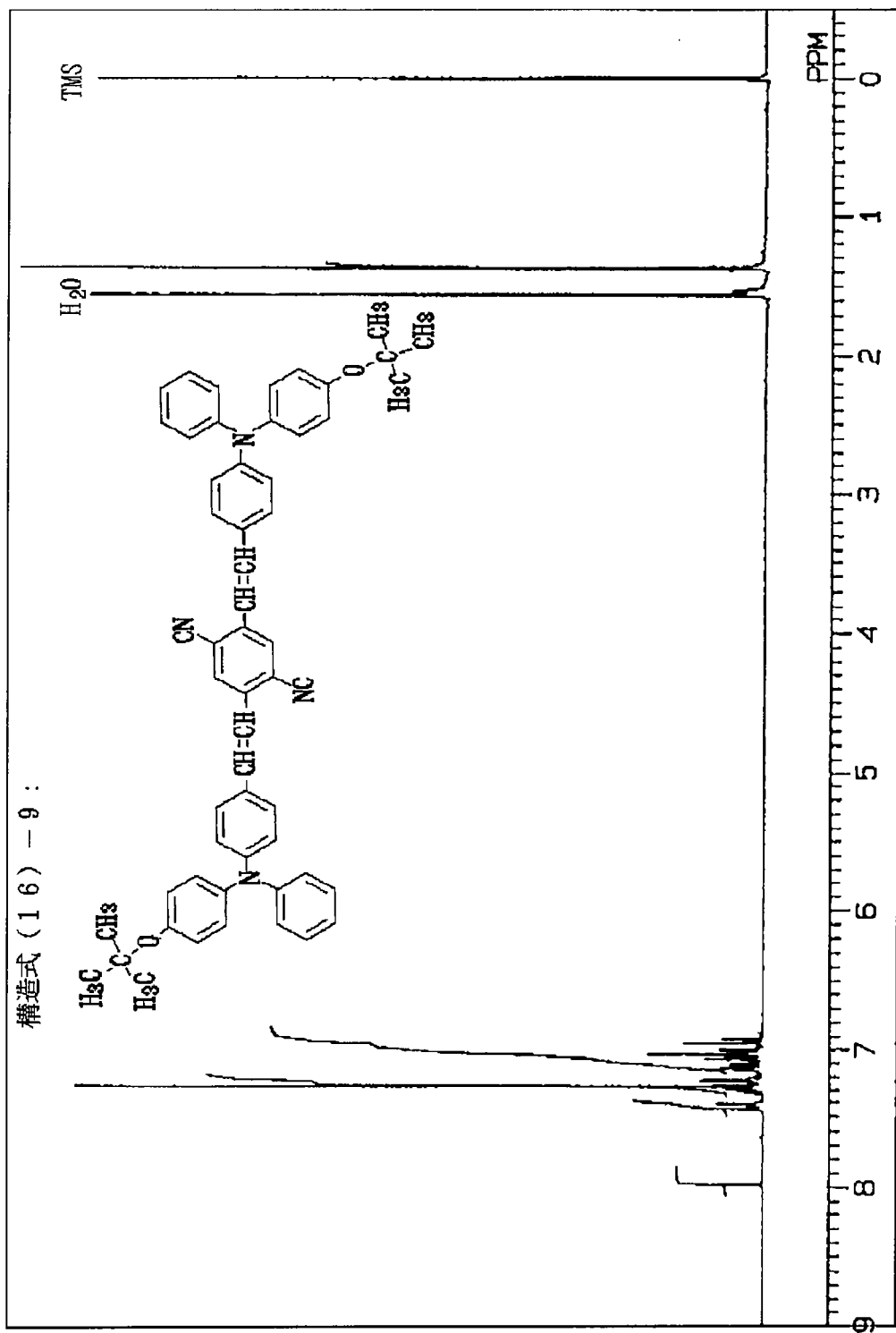
構造式 (57) :

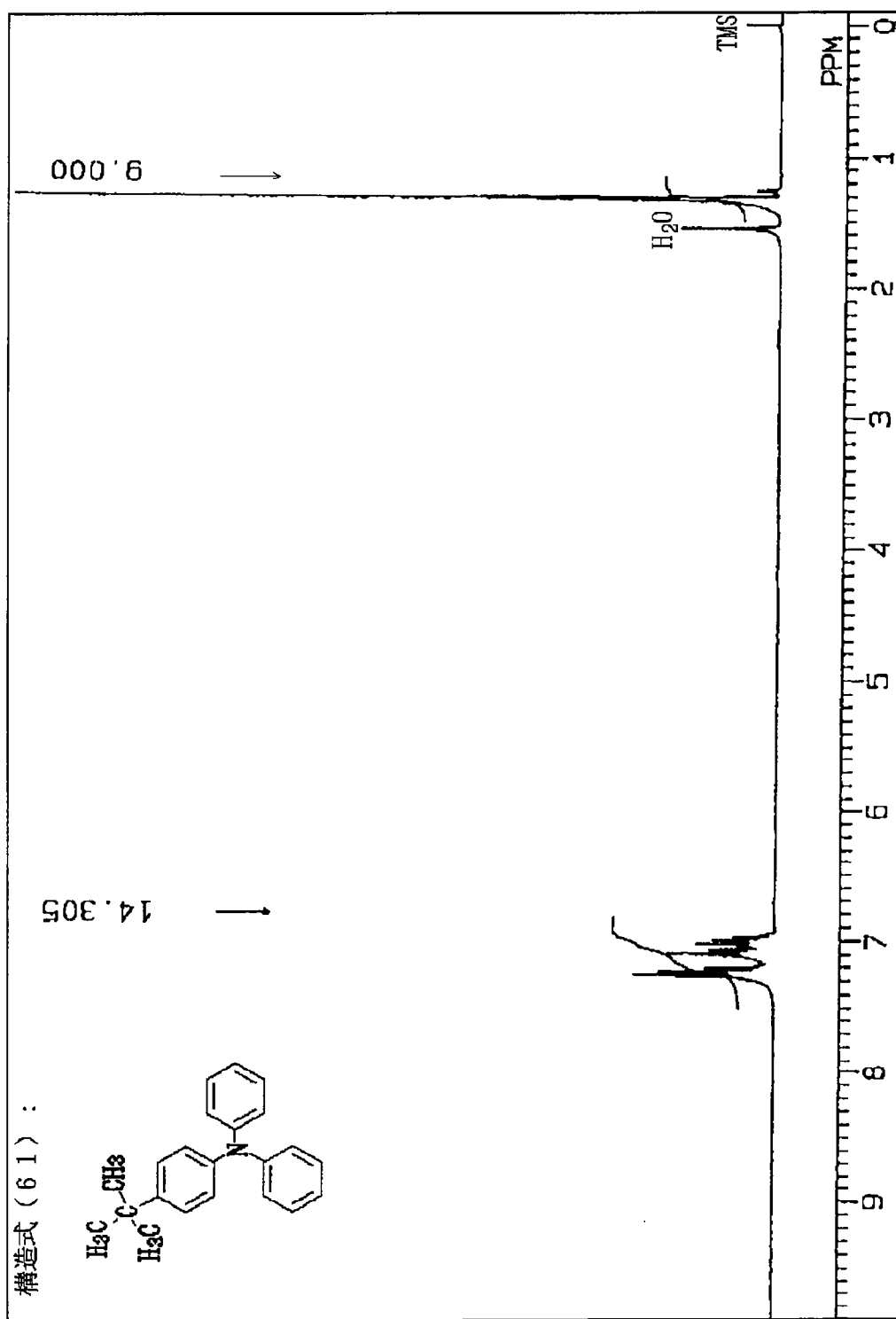


【図 17】

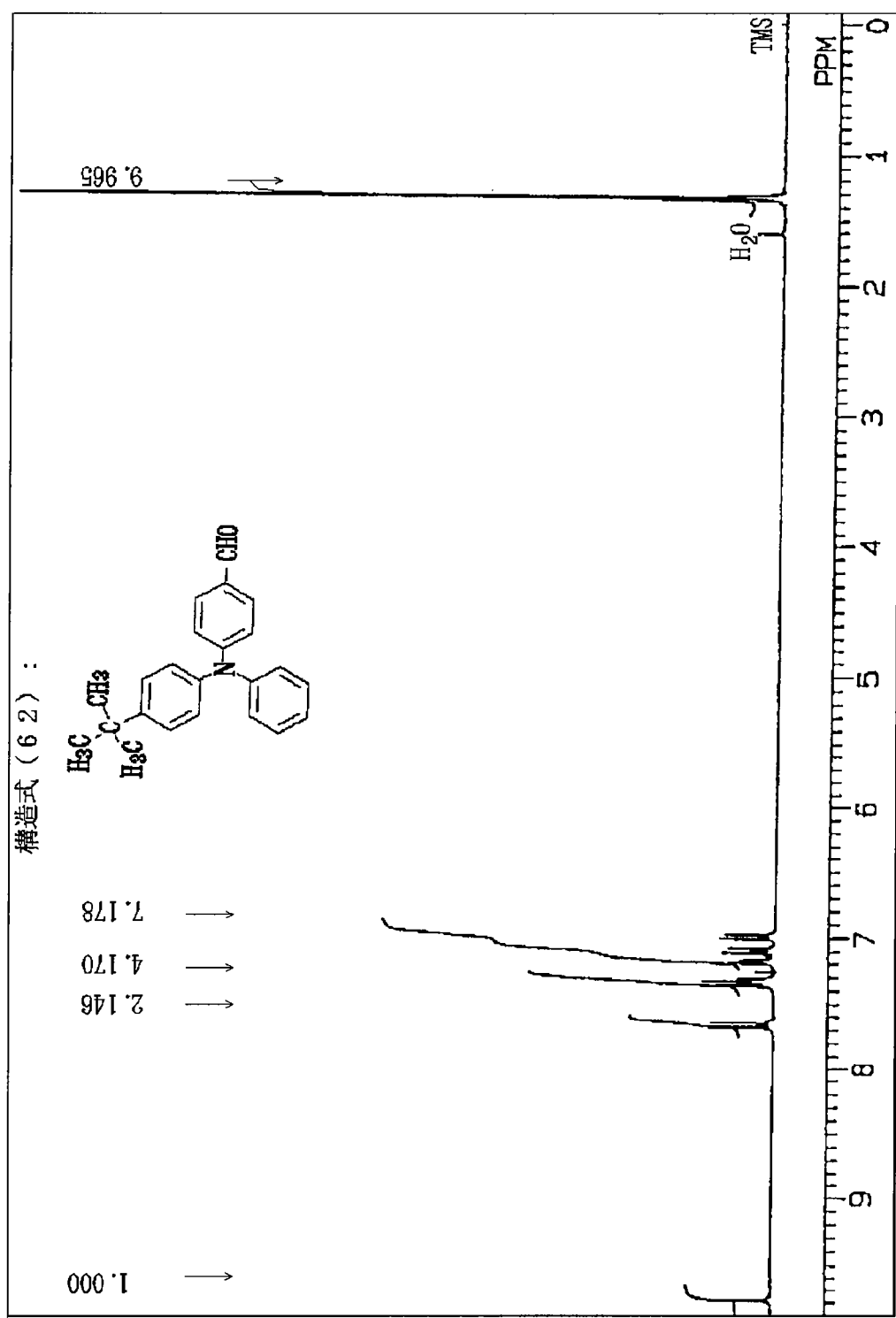


【图 18】



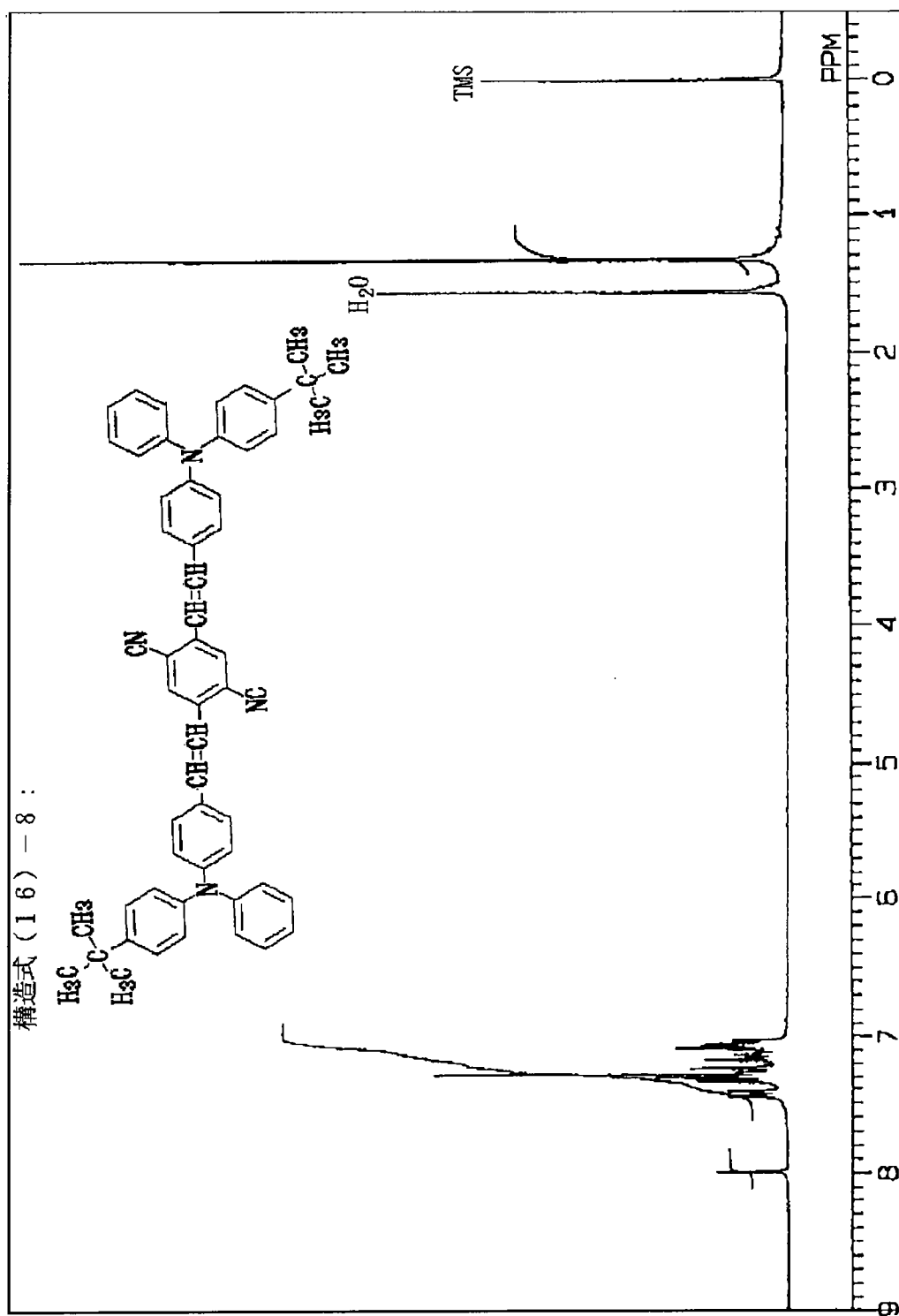


【図 19】

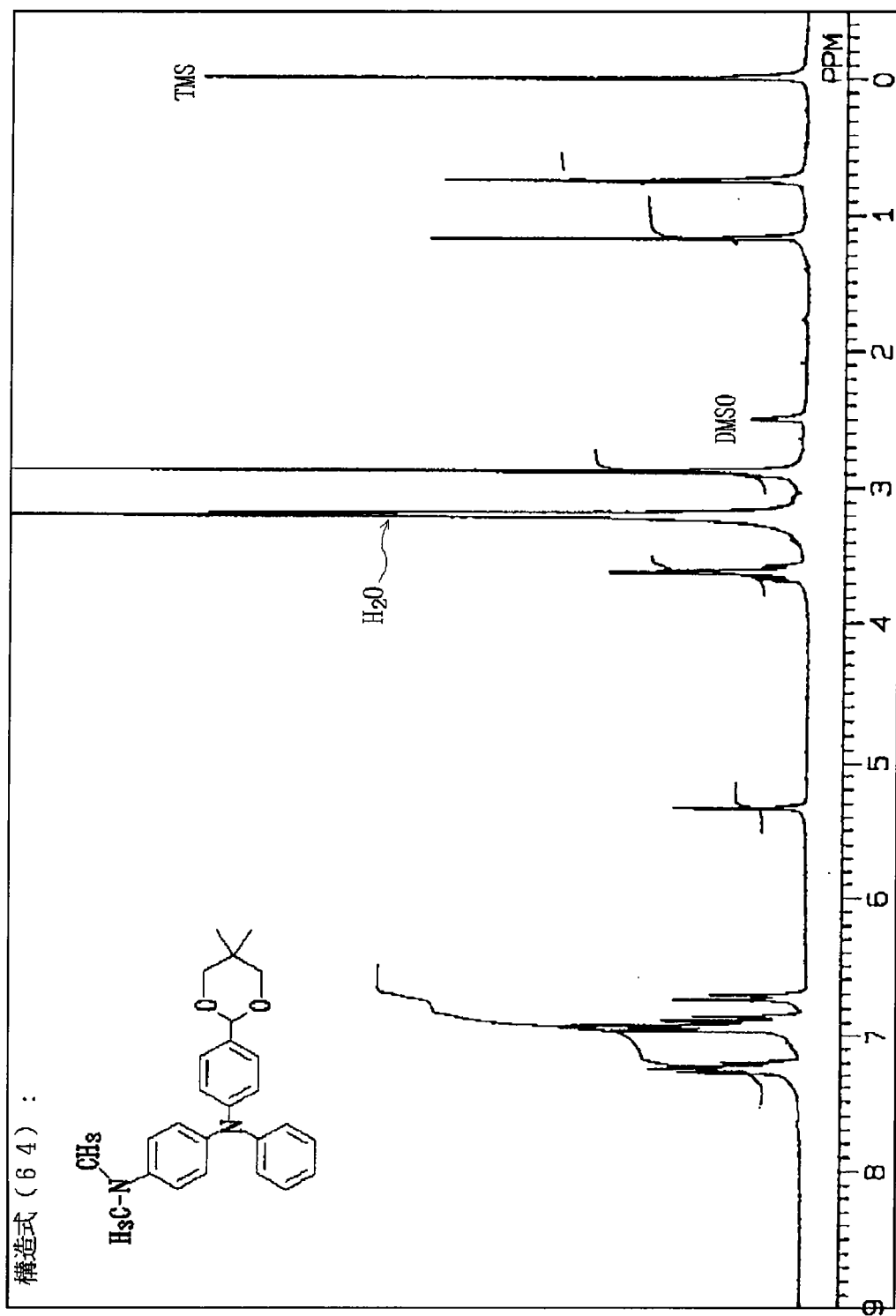


【図20】

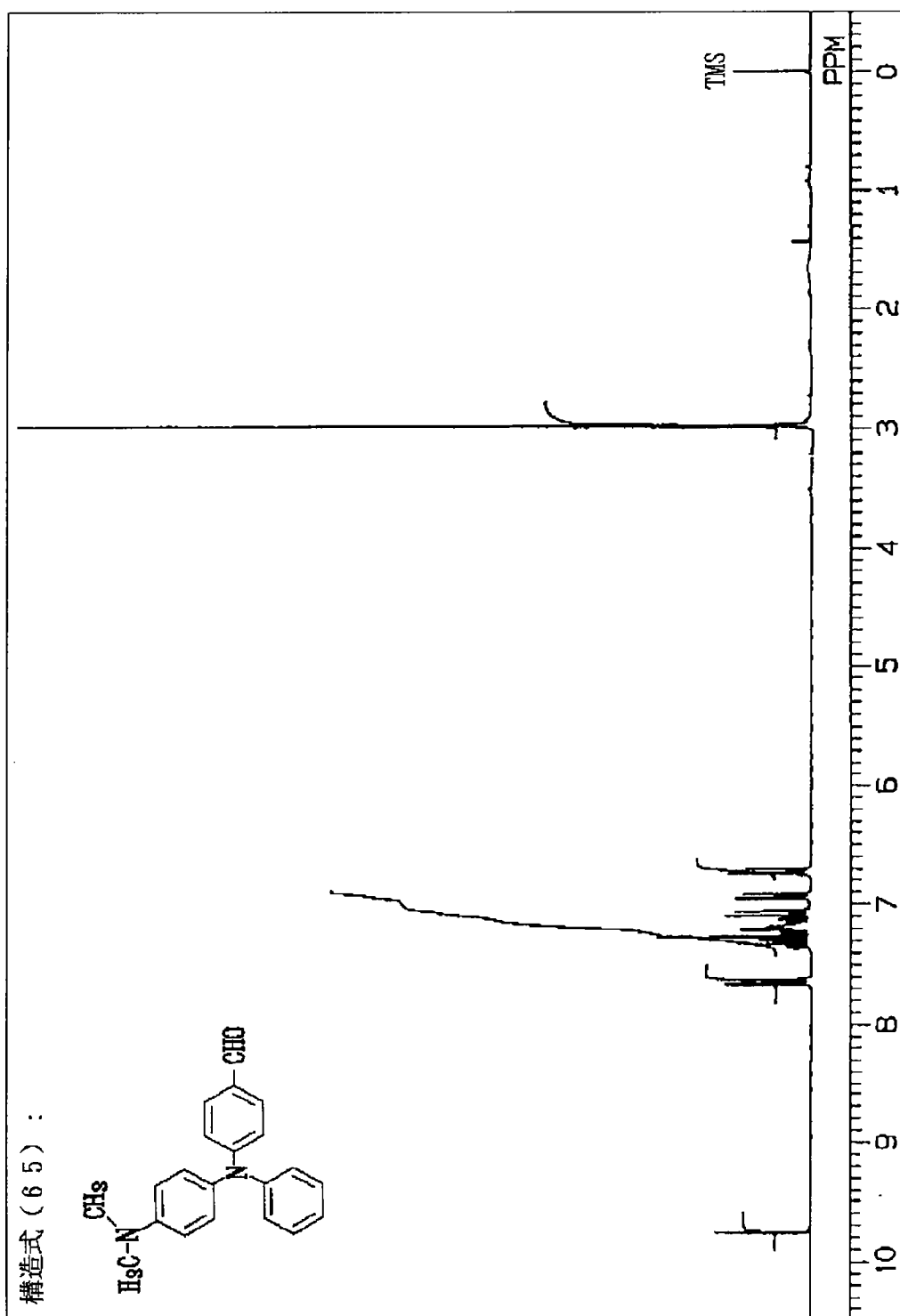
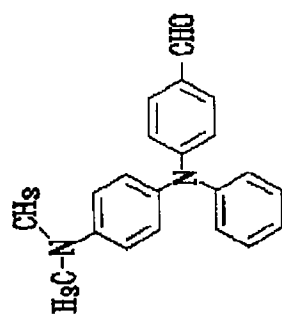
【図 2 1】



【図 2 2】

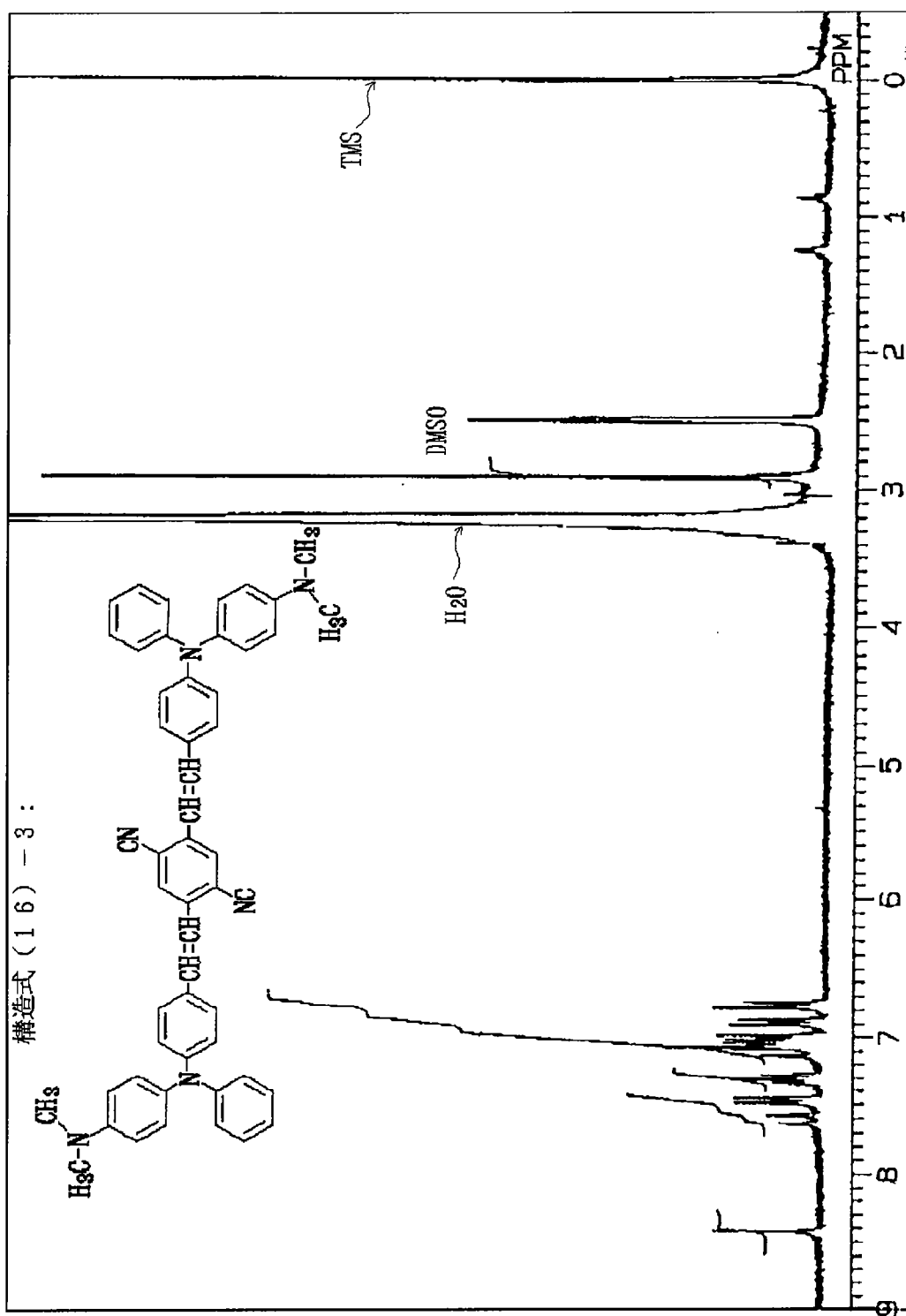


構造式 (65) :



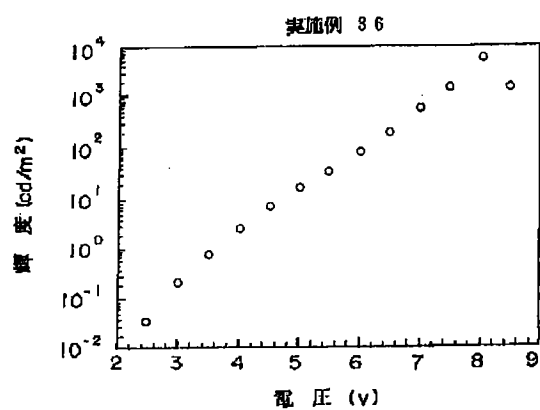
【図 23】

構造式 (16) - 3 :

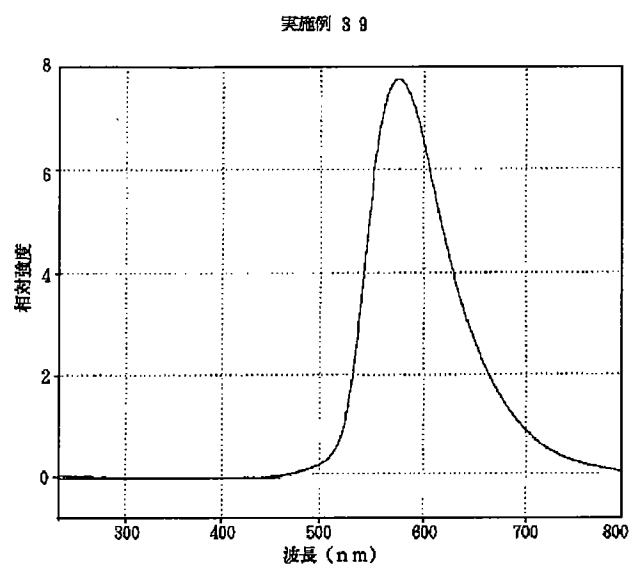


【図 2 4】

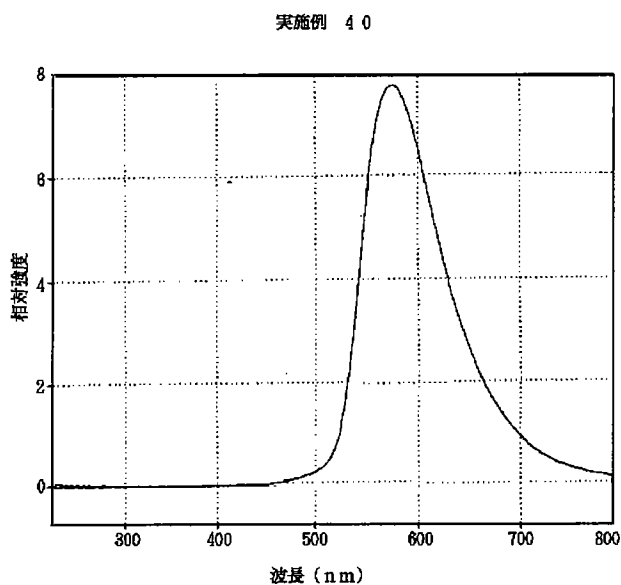
【図 3 6】



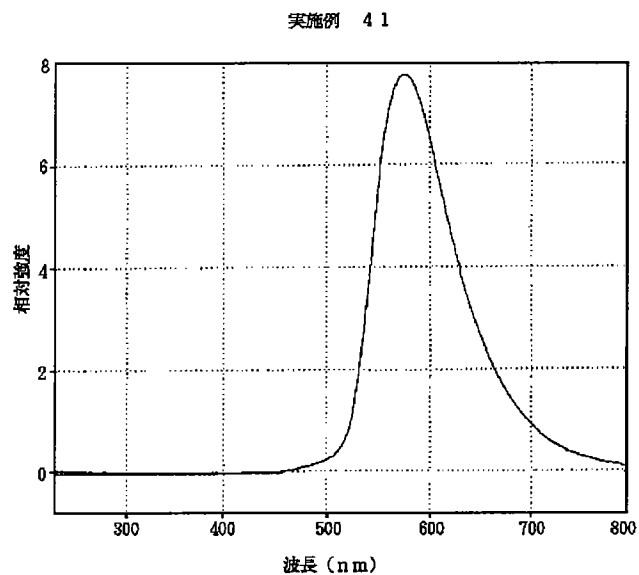
【図 3 7】



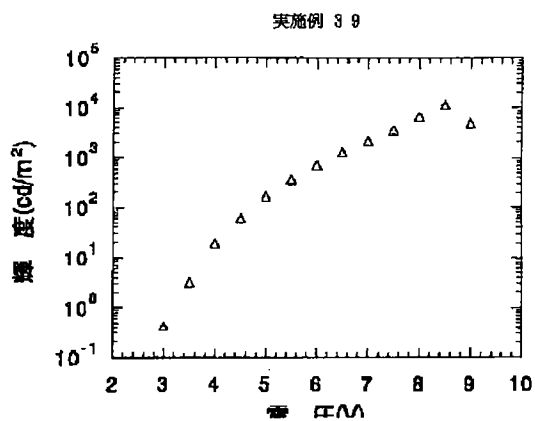
【図 3 8】



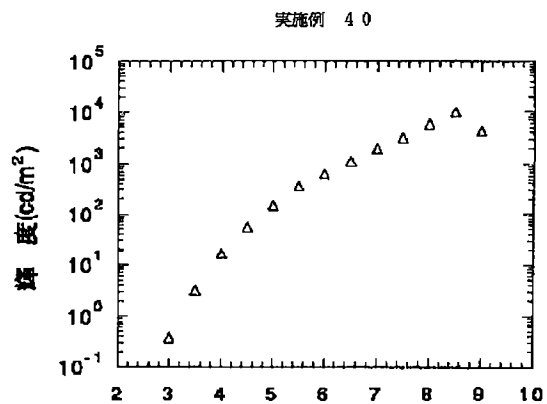
【図 3 9】



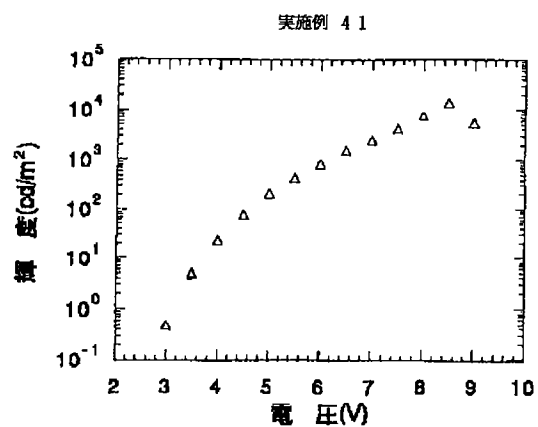
【図 4 0】



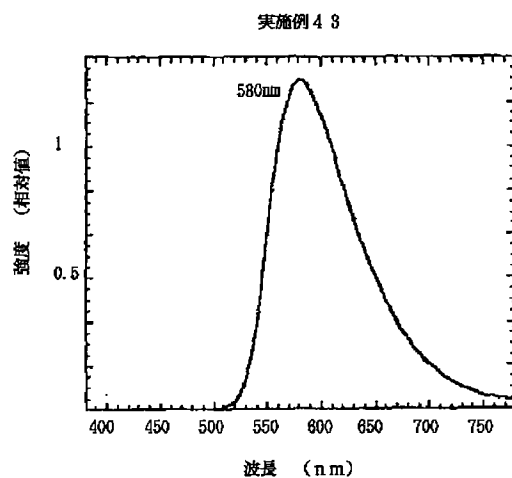
【図 4 1】



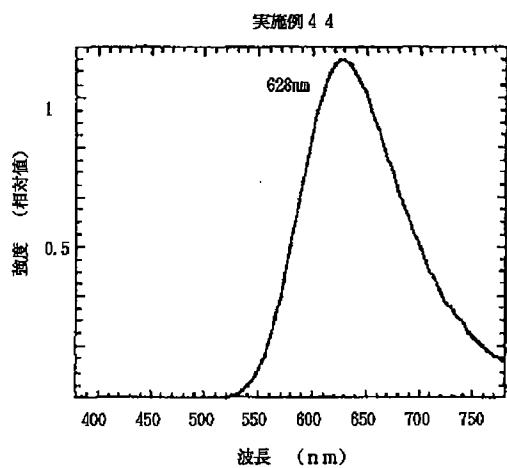
【図 4 2】



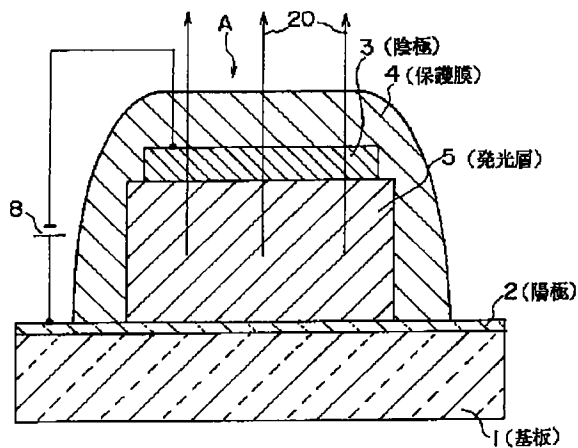
【図 4 3】



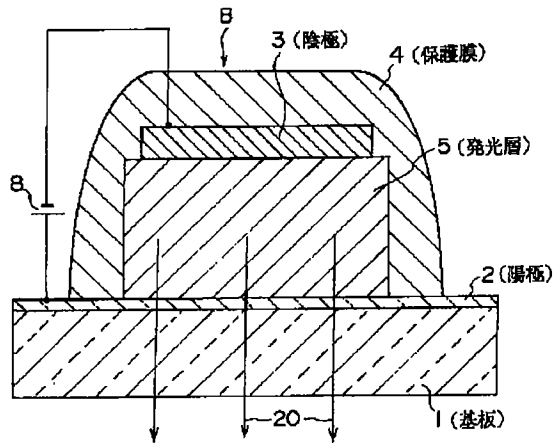
【図 4 4】



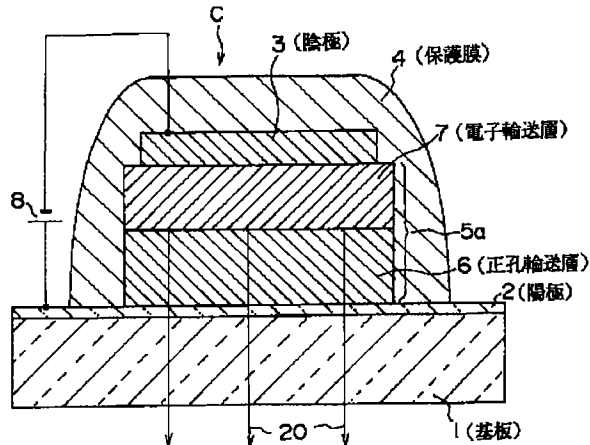
【図 4 5】



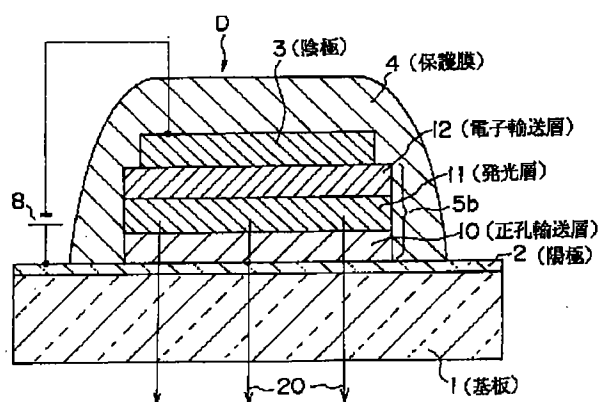
【図 4 6】



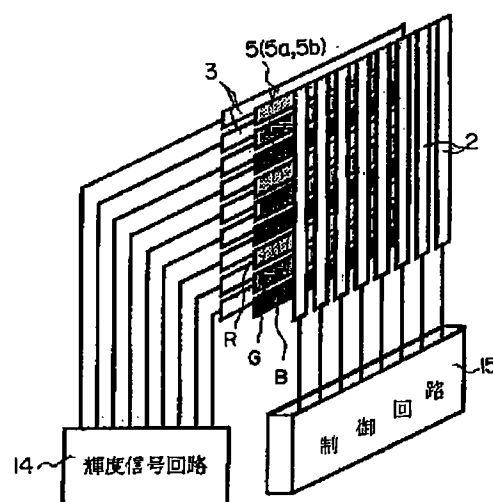
【図 4 7】



【図 48】



【図 49】



【手続補正書】

【提出日】平成11年11月30日(1999. 11. 30)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】図面の簡単な説明

【補正方法】変更

【補正内容】

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-1)の¹H NMRスペクトル図である。

【図2】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-2)の¹H NMRスペクトル図である。

【図3】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-4)の¹H NMRスペクトル図である。

【図4】本発明の合成中間体としての4-[N, N-ジ(4-メトキシフェニル)アミノ]ベンズアルデヒド(構造式(27)-2)の¹H NMRスペクトル図である。

【図5】本発明の合成中間体としてのN, N-ジ(4-メトキシフェニル)アニリン(構造式(36)-2)の¹H NMRスペクトル図である。

【図6】本発明の合成中間体としてのN-(1-フェニル)-N-(4-エトキシフェニル)アニリン(構造式(36)-1)の¹H NMRスペクトル図である。

【図7】本発明の合成中間体としての2, 5-ジ(プロモメチル)テレフタロニトリル(構造式(35a))の¹H NMRスペクトル図である。

ル)-N, N-ジフェニルアミン(構造式(36)-6)の¹H NMRスペクトル図である。

【図9】本発明の合成中間体としての4-[N-(p-トルイル)-N-フェニルアミノ]ベンズアルデヒド(構造式(27)-6)の¹H NMRスペクトル図である。

【図10】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-6)の¹H NMRスペクトル図である。

【図11】本発明の合成中間体としてのN, N-(p-トルイル-N-フェニルアミン(構造式(36)-7)の¹H NMRスペクトル図である。

【図12】本発明の合成中間体としての4-[N, N-ジ(p-トルイル)アミノ]ベンズアルデヒド(構造式(27)-7)の¹H NMRスペクトル図である。

【図13】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物(構造式(16)-7)の¹H NMRスペクトル図である。

【図14】本発明の合成中間体としてのアセタール化合物(構造式(53))の¹H NMRスペクトル図である。

【図15】本発明の合成中間体としての化合物(構造式(55))の¹H NMRスペクトル図である。

【図16】本発明の合成中間体としてのアセタール化合物(構造式(56))の¹H NMRスペクトル図である。

【図17】本発明の合成中間体としてのアルデヒド化合物(構造式(57))の¹H NMRスペクトル図である。

【図18】本発明のビス(アミノスチリル)ベンゼン化

である。

【図 1 9】本発明の合成中間体としてのアミン化合物（構造式（6 1））の ^1H NMR スペクトル図である。

【図 2 0】本発明の合成中間体としてのアルデヒド化合物（構造式（6 2））の ^1H NMR スペクトル図である。

【図 2 1】本発明のビス（アミノステリル）ベンゼン化合物（構造式（1 6）－8）の ^1H NMR スペクトル図である。

【図 2 2】本発明の合成中間体としてのアセタール化合物（構造式（6 4））の ^1H NMR スペクトル図である。

【図 2 3】本発明の合成中間体としてのアルデヒド化合物（構造式（6 5））の ^1H NMR スペクトル図である。

【図 2 4】本発明のビス（アミノステリル）ベンゼン化合物（構造式（1 6）－3）の ^1H NMR スペクトル図である。

【図 2 5】本発明の実施例 2 7 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 2 6】同、実施例 2 8 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 2 7】同、実施例 2 7 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 2 8】同、実施例 2 8 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 2 9】同、実施例 3 1 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 3 0】同、実施例 3 2 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 3 1】同、実施例 3 1 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 3 2】同、実施例 3 2 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 3 3】同、実施例 3 5 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 3 4】同、実施例 3 6 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 3 5】同、実施例 3 5 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 3 6】同、実施例 3 6 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 3 7】同、実施例 3 9 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 3 8】同、実施例 4 0 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 3 9】同、実施例 4 1 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 4 0】同、実施例 3 9 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 4 1】同、実施例 4 0 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 4 2】同、実施例 4 1 による有機電界発光素子の電圧－輝度特性図である。

【図 4 3】同、実施例 4 3 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 4 4】同、実施例 4 4 による有機電界発光素子の発光スペクトル図である。

【図 4 5】本発明に基づく有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図 4 6】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図 4 7】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図 4 8】同、他の有機電界発光素子の要部概略断面図である。

【図 4 9】同、有機電界発光素子を用いたマルチ又はフルカラーの平面ディスプレイの構成図である。

【符号の説明】

1…基板、2…透明電極（陽極）、3…陰極、4…保護膜、5、5 a、5 b…有機層、6…正孔輸送層、7…電子輸送層、8…電源、1 0…正孔輸送層、1 1…発光層、1 2…電子輸送層、1 4…輝度信号回路、1 5…制御回路、2 0…発光光、A、B、C、D…有機電界発光素子

フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

ターモコード（参考）

C 0 7 C 253/30

C 0 7 C 253/30

255/51

255/51

C 0 7 F 9/40

C 0 7 F 9/40

E

9/54

9/54

C 0 9 K 11/06

6 2 5

C 0 9 K 11/06

6 2 5

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

B

(72)発明者 石橋 義
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内

(72)発明者 高田 一範
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内

【公報種別】 特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】 第 3 部門第 3 区分

【発行日】 平成 18 年 5 月 18 日 (2006. 5. 18)

【公開番号】 特開 2000-230132 (P2000-230132A)

【公開日】 平成 12 年 8 月 22 日 (2000. 8. 22)

【出願番号】 特願平 11-312069

【国際特許分類】

C09B 23/00 (2006.01)

C07C 211/56 (2006.01)

C07C 217/92 (2006.01)

C07C 223/06 (2006.01)

C07C 253/30 (2006.01)

C07C 255/51 (2006.01)

C07F 9/40 (2006.01)

C07F 9/54 (2006.01)

C09K 11/06 (2006.01)

H01L 51/50 (2006.01)

【F I】

C09B 23/00 E

C09B 23/00 J

C07C211/56

C07C217/92

C07C223/06

C07C253/30

C07C255/51

C07F 9/40 E

C07F 9/54

C09K 11/06 625

H05B 33/14 B

【手続補正書】

【提出日】 平成 18 年 3 月 28 日 (2006. 3. 28)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 特許請求の範囲

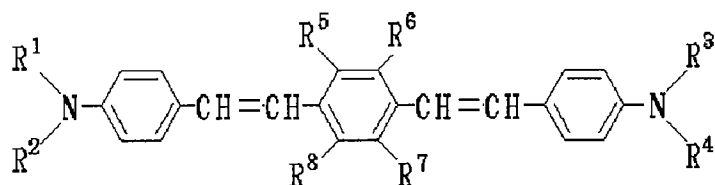
【補正方法】 変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物。

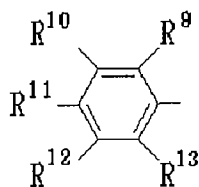
一般式〔I〕：



R⁴は下記一般式（1）で表わされるアリール基であり

【化2】

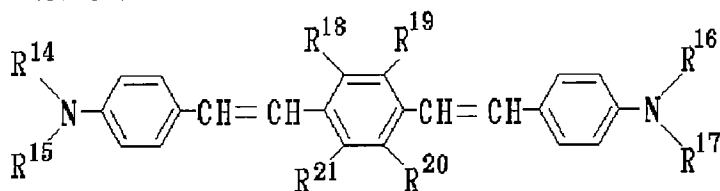
一般式（1）：



（但し、前記一般式（1）において、R⁹、R¹⁰、R¹¹、R¹²及びR¹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）

【化3】

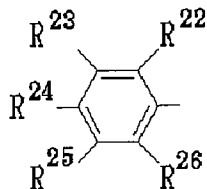
一般式〔II〕：



〔但し、前記一般式〔II〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（2）で表されるアリール基であり

【化4】

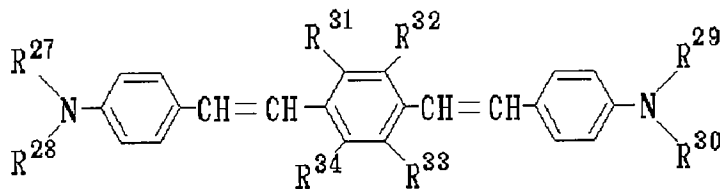
一般式（2）：



（但し、前記一般式（2）において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）

【化5】

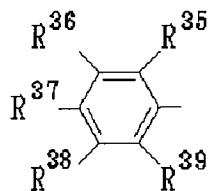
一般式〔III〕：



〔但し、前記一般式〔III〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも1つが下記一般式（3）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化6】

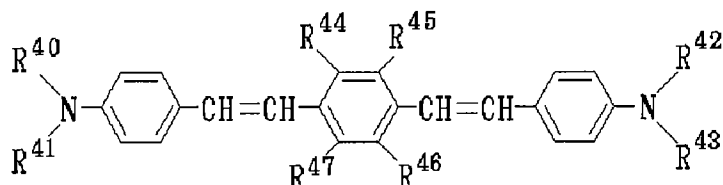
一般式 (3) :



(但し、前記一般式 (3) において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。)、R³¹、R³²、R³³及びR³⁴は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化7】

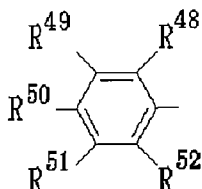
一般式 (IV) :



[但し、前記一般式 (IV) において、R⁴¹及びR⁴²は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表されるアリール基であり

【化8】

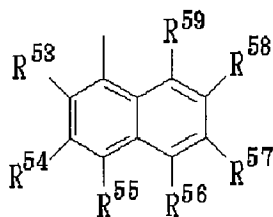
一般式 (4) :



(但し、前記一般式 (4) において、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰、R⁵¹及びR⁵²は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁴⁰及びR⁴³は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (5) で表されるアリール基であり

【化9】

一般式 (5) :

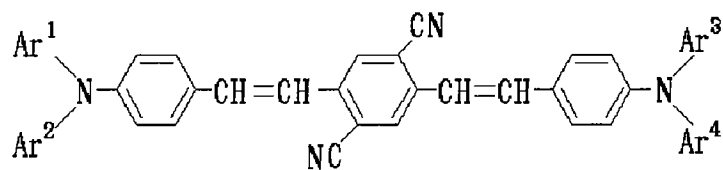


(但し、前記一般式 (5) において、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸及びR⁵⁹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶及びR⁴⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【請求項2】 下記一般式で表される、請求項1に記載したビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物。

【化10】

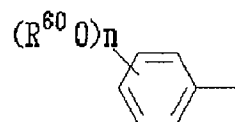
一般式：



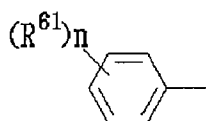
〔但し、前記一般式において、 $A r^1$ 、 $A r^2$ 、 $A r^3$ 及び $A r^4$ はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式（６）、（７）、（８）及び（９）で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化１１】

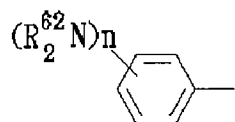
一般式（６）：



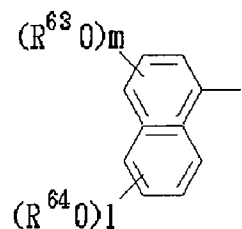
一般式（７）：



一般式（８）：



一般式（９）：



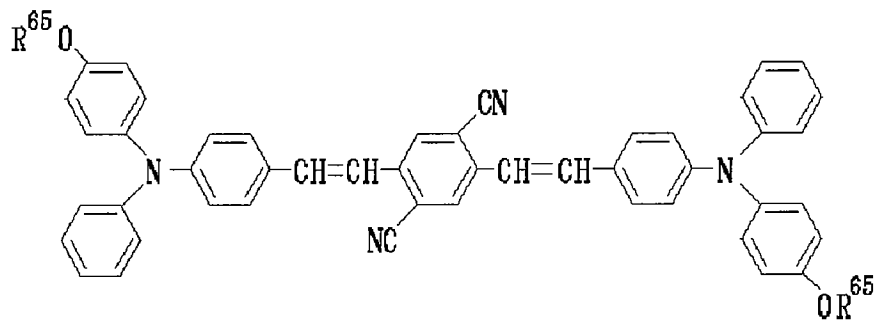
（但し、前記一般式（６）、（７）、（８）及び（９）において、 R^{60} は炭素数２以上の飽和又は不飽和の炭化水素基（或いは、 $A r^1$ 、 $A r^2$ 、 $A r^3$ 及び $A r^4$ のすべてが一般式（６）のアリール基である場合には、 R^{60} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基）であり、 R^{61} 及び R^{62} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{63} 及び R^{64} はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は０～５の整数であり、 m は０～３の整数であり、 l は０～４の整数である。）

【請求項３】 前記 R^{60} の炭素数が２～６であり、前記 R^{61} 、 R^{62} 、 R^{63} 及び R^{64} の炭素数が１～６である、請求項２に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物。

【請求項４】 下記一般式（１０）、（１１）、（１２）、（１３）、（１４）、（１５）又は（１５′）で表される、請求項２に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物。

【化１２】

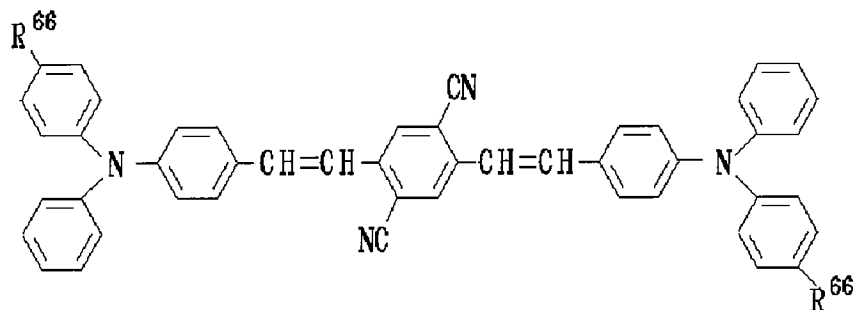
一般式 (10) :



(但し、前記一般式 (10) において、 R^{65} は炭素数 2 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 13】

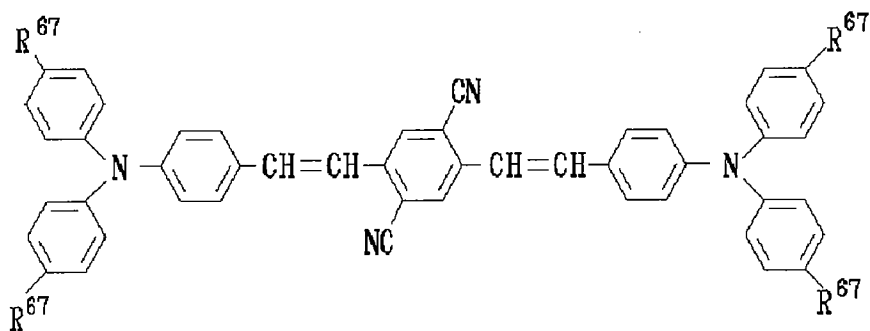
一般式 (11) :



(但し、前記一般式 (11) において、 R^{66} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 14】

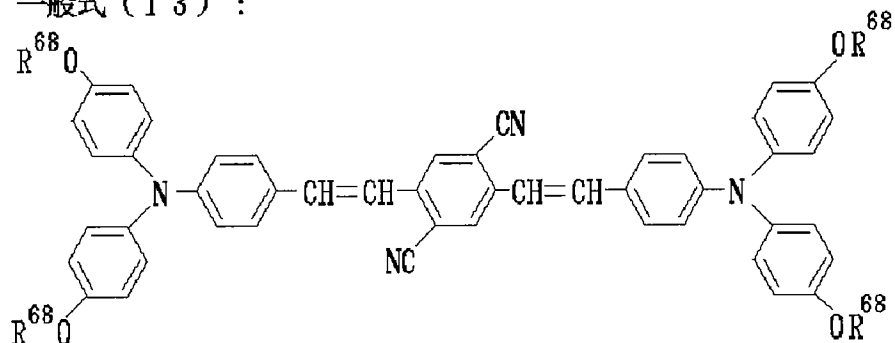
一般式 (12) :



(但し、前記一般式 (12) において、 R^{67} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化 15】

一般式 (13) :

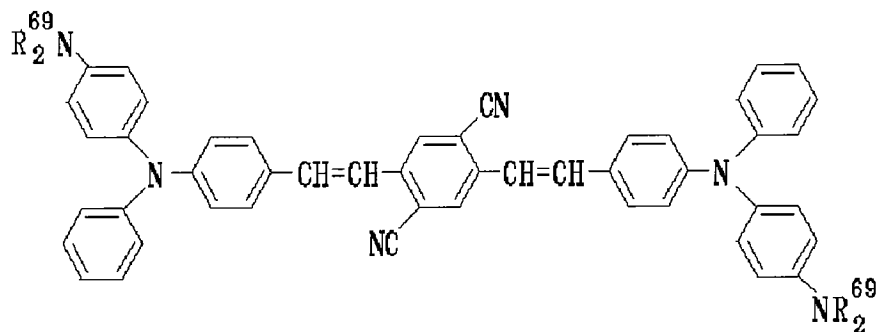


(但し、前記一般式 (13) において、 R^{68} は炭素数 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素

基である。)

【化16】

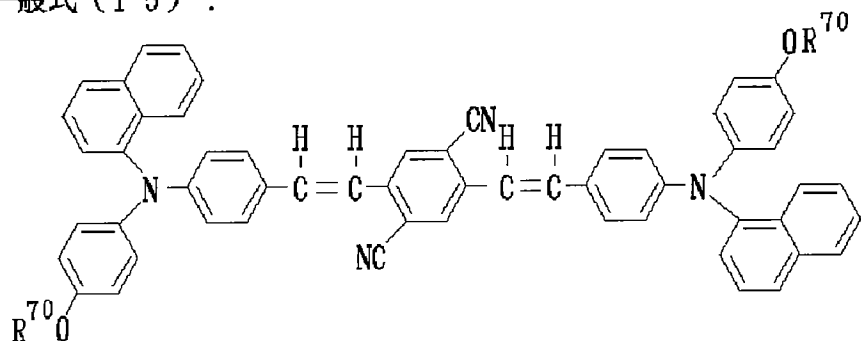
一般式(14) :



(但し、前記一般式(14)において、R⁶⁹は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化17】

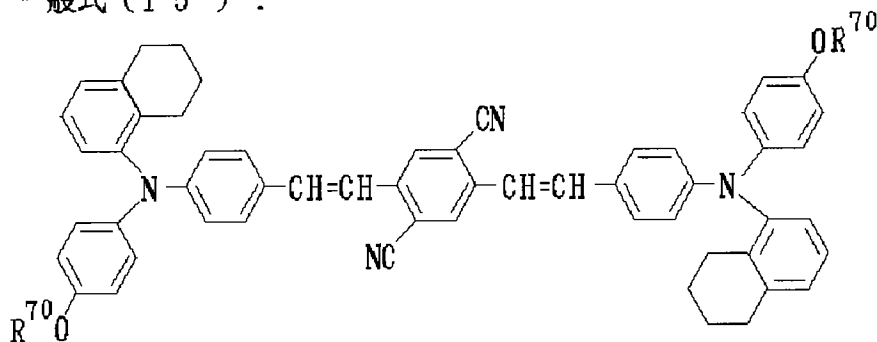
一般式(15) :



(但し、前記一般式(15)において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化18】

一般式(15') :

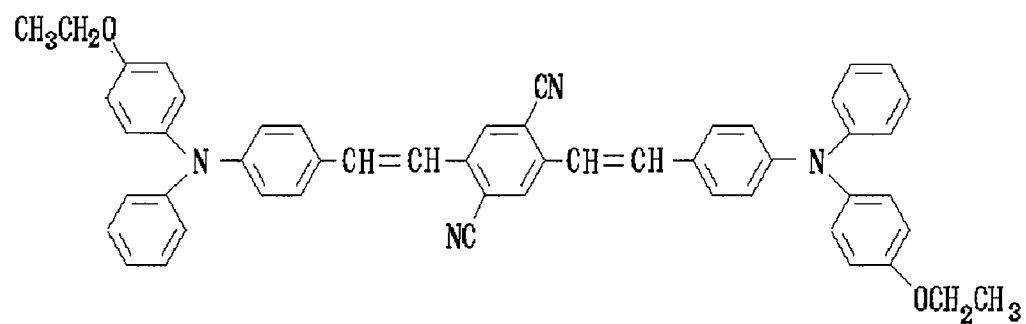


(但し、前記一般式(15')において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

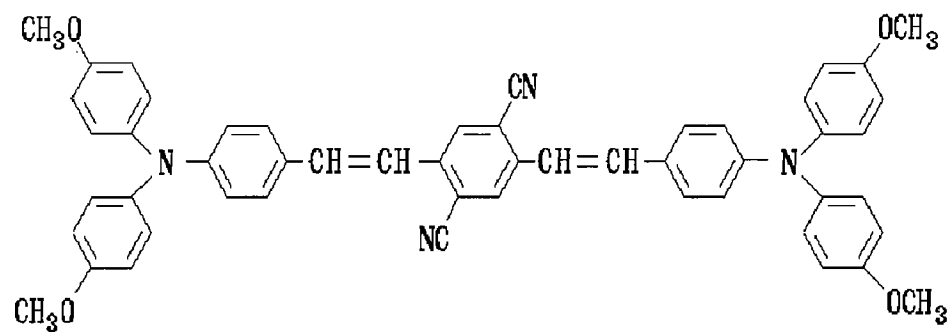
【請求項5】 下記構造式(16)－1、(16)－2、(16)－3、(16)－4、(16)－5、(16)－6、(16)－7、(16)－8、(16)－9、(16)－10、(16)－11、(16)－12又は(16)－13で表される、請求項2に記載したビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物。

【化19】

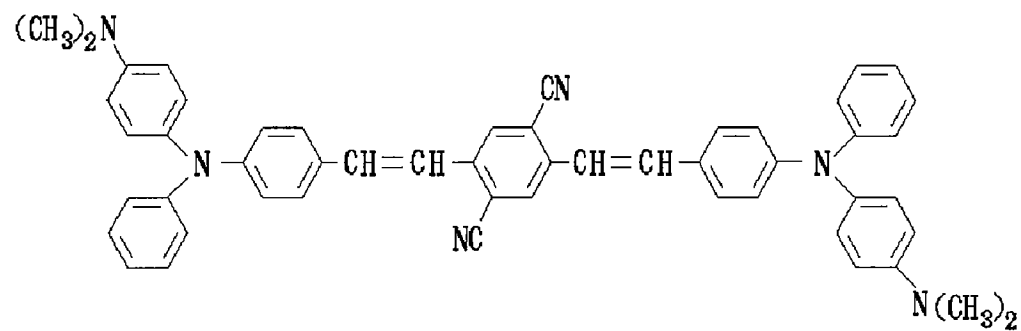
構造式 (16) - 1 :



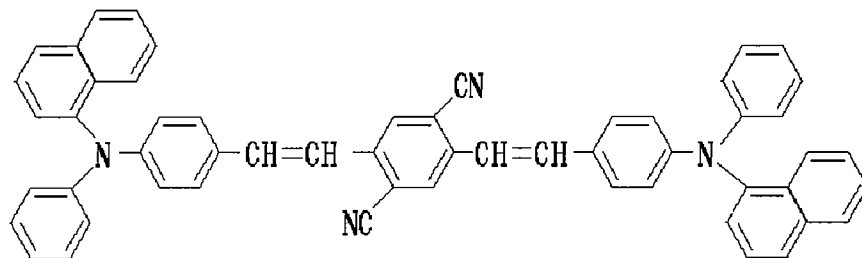
構造式 (16) - 2 :



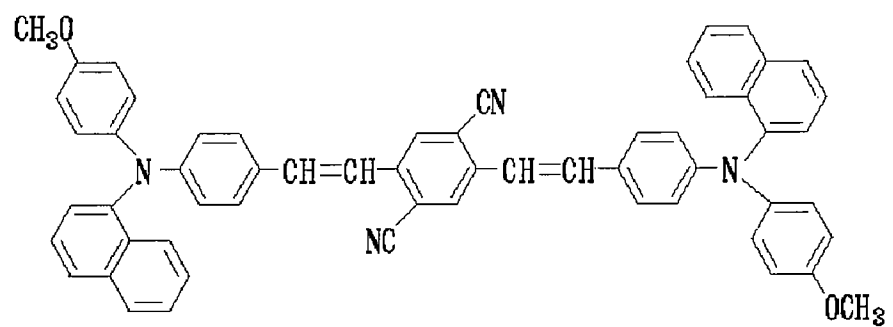
構造式 (16) - 3 :



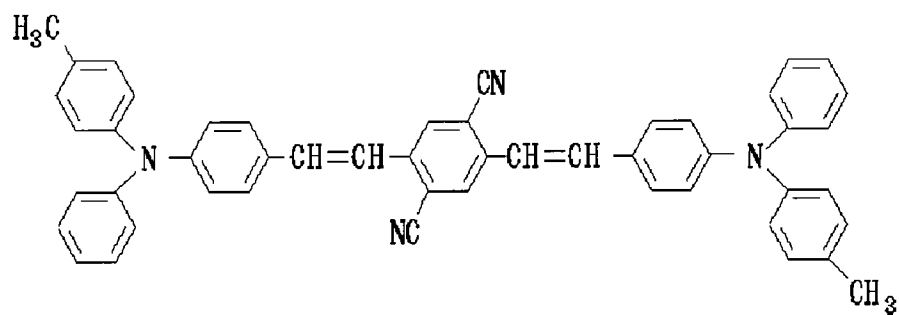
構造式 (16) - 4 :



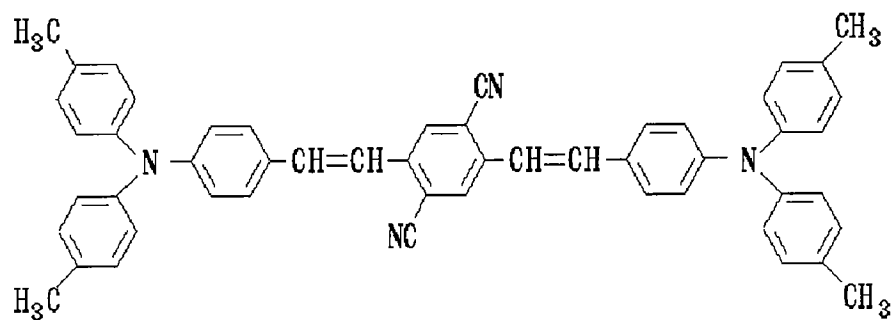
構造式 (16) - 5 :



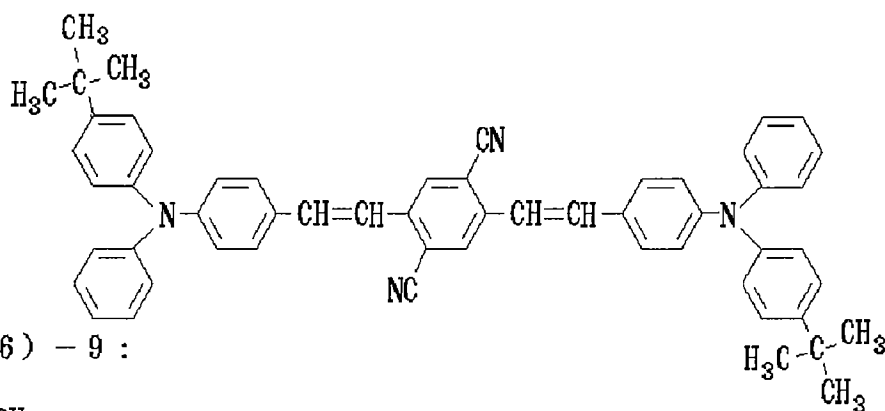
構造式 (16) - 6 :



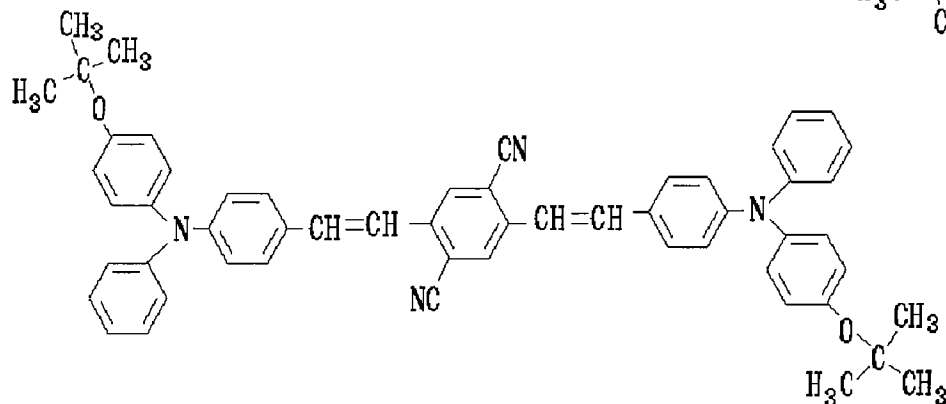
構造式 (16) - 7 :



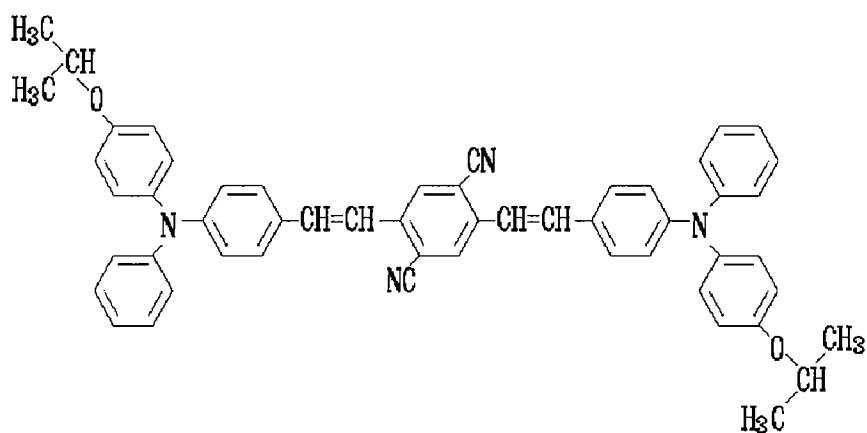
構造式 (16) - 8 :



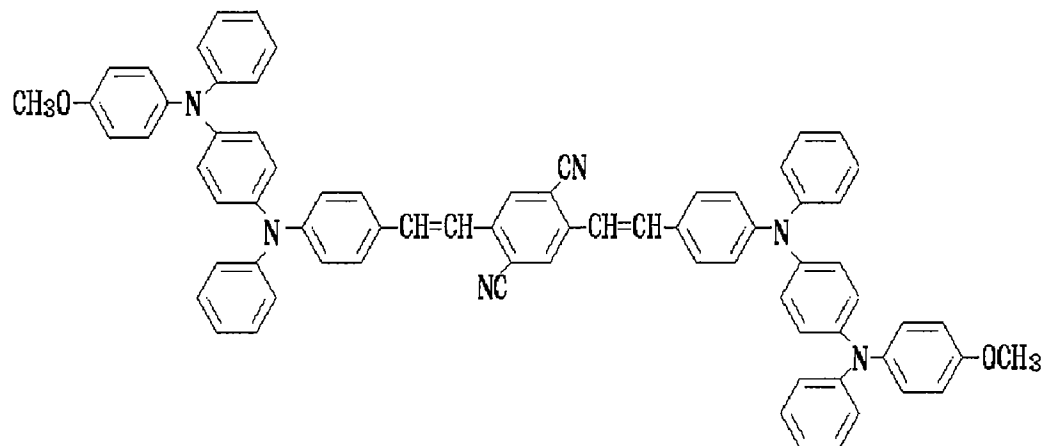
構造式 (16) - 9 :



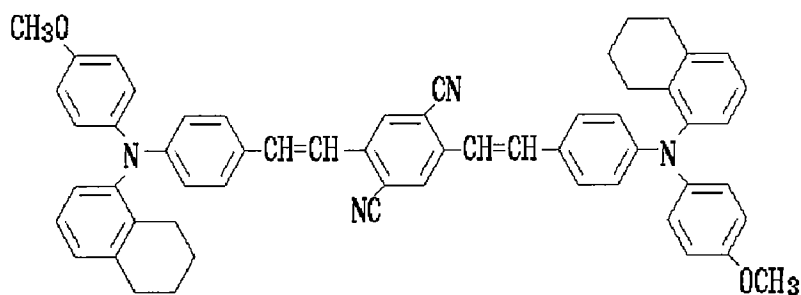
構造式 (16) - 10 :



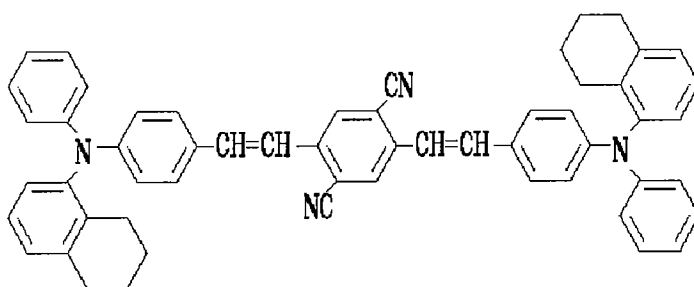
構造式 (16) - 11 :



構造式 (16) - 12 :



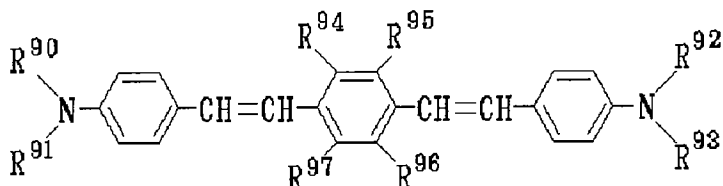
構造式 (16) - 13 :



【請求項 6】 下記一般式 [XIX] で表されるビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物。

【化 20】

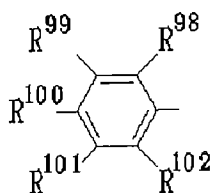
一般式 [XIX] :



〔但し、前記一般式 [XIX] において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが下記一般式 (40) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化 21】

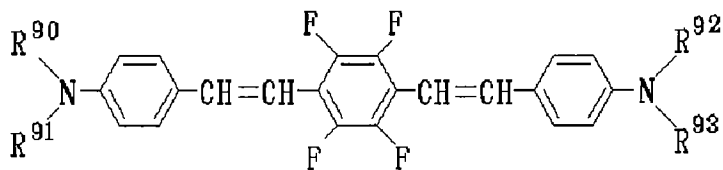
一般式 (40) :



〔但し、前記一般式 (40) において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R^{100} 、 R^{101} 及び R^{102} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが水素原子、炭素数 1 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも 1 つがフッ素原子である。〕

【化 2 2】

一般式 (XX) :

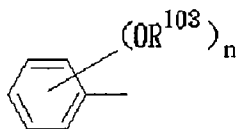


〔但し、前記一般式 (XX) において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は前記したものと同一である。〕

【請求項 8】 前記 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は少なくとも 1 つが下記一般式 (4 1) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基である、請求項 7 に記載したビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物。

【化 2 3】

一般式 (4 1) :

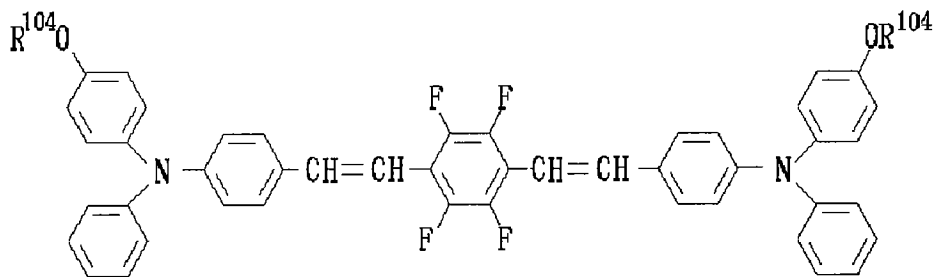


〔但し、前記一般式 (4 1) において、 R^{103} は炭素数が 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0 ～ 5 の整数である。〕

【請求項 9】 下記一般式 (4 2) で表される、請求項 8 に記載したビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物。

【化 2 4】

一般式 (4 2) :

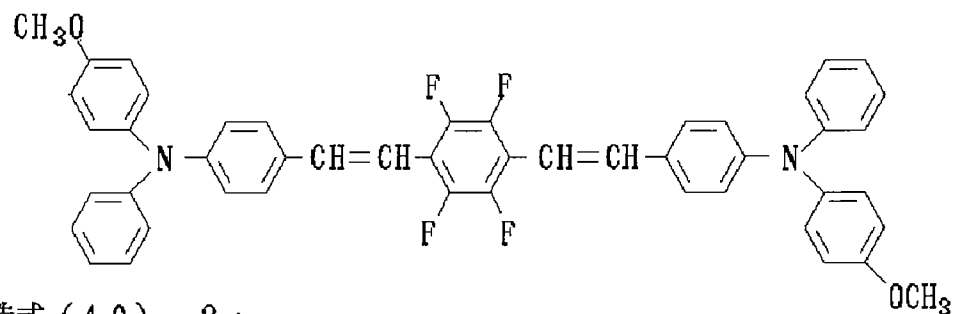


〔但し、前記一般式 (4 2) において、 R^{104} は炭素数が 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。〕

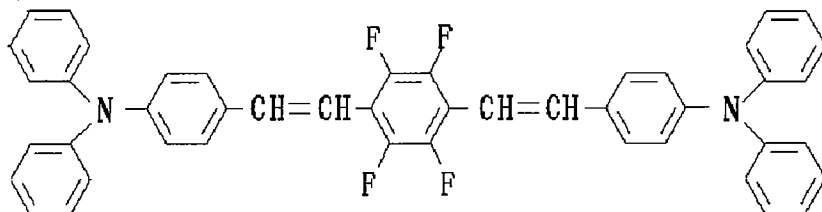
【請求項 10】 下記構造式 (4 0) - 1、(4 0) - 2、(4 0) - 3、(4 0) - 4、(4 0) - 5、(4 0) - 6 又は (4 0) - 7 で示される、請求項 7 に記載したビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物。

【化 2 5】

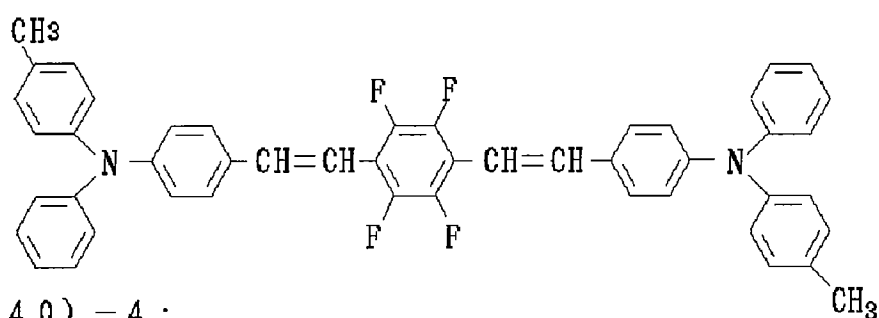
構造式(40)-1:



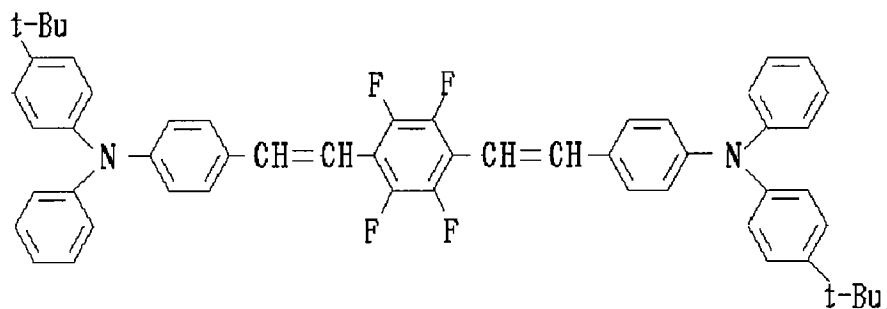
構造式(40)-2:



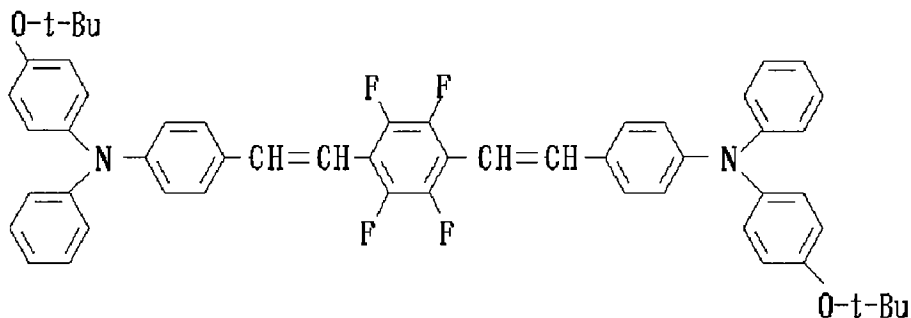
構造式(40)-3:



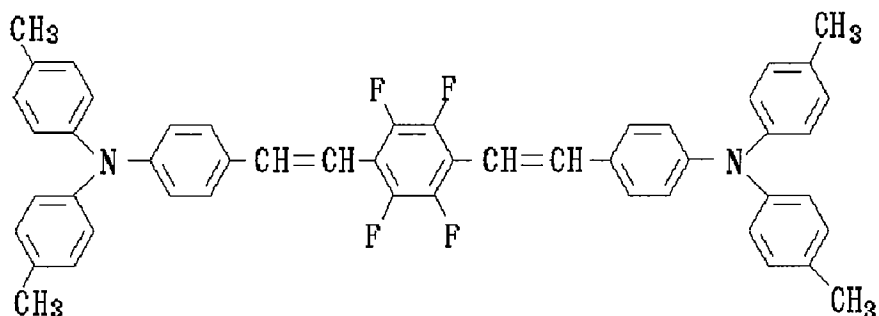
構造式(40)-4:



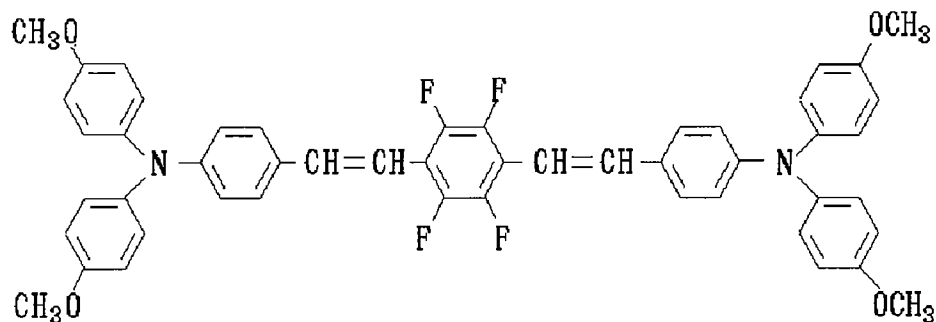
構造式(40) - 5 :



構造式(40) - 6 :



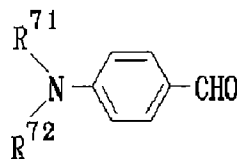
構造式(40) - 7 :



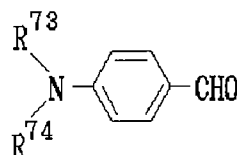
【請求項11】 下記一般式〔V〕又は〔VI〕で表される4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの少なくとも1種と;下記一般式〔VII〕で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式〔VIII〕で表されるジホスホニウム塩と;を縮合させることによって、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物を得る、ビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の製造方法。

【化26】

一般式〔V〕 :



一般式〔VI〕 :

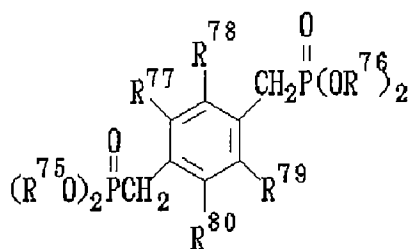


(但し、前記一般式〔V〕及び〔VI〕において、R⁷¹及びR⁷²はそれぞれ、下記R¹、R²

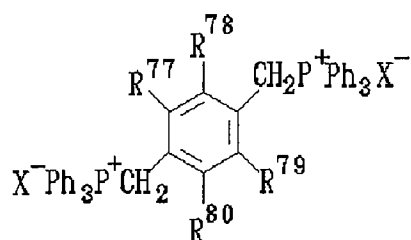
、R¹⁴、R¹⁵、R²⁷、R²⁸、R⁴⁰又はR⁴¹に相当するアリール基であり、R⁷³及びR⁷⁴はそれぞれ、下記R³、R⁴、R¹⁶、R¹⁷、R²⁹、R³⁰、R⁴²又はR⁴³に相当するアリール基である。)

【化27】

一般式〔Ⅶ〕：



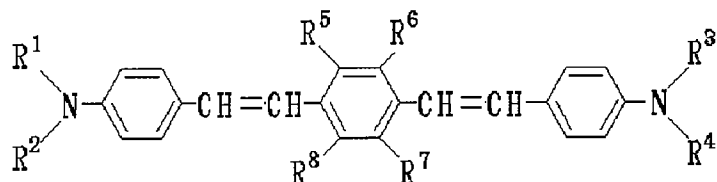
一般式〔Ⅷ〕：



(但し、前記一般式〔Ⅶ〕及び〔Ⅷ〕において、R⁷⁵及びR⁷⁶はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、R⁷⁷、R⁷⁸、R⁷⁹及びR⁸⁰はそれぞれ、下記R⁵、R⁶、R⁷、R⁸、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰、R²¹、R³¹、R³²、R³³、R³⁴、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶又はR⁴⁷に相当する基であり、Xはハロゲン原子である。)

【化28】

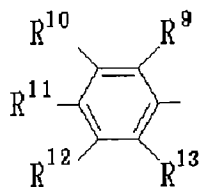
一般式〔Ⅰ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅰ〕において、R²及びR³は無置換のアリール基であり、R¹及びR⁴は下記一般式(1)で表されるアリール基であり

【化29】

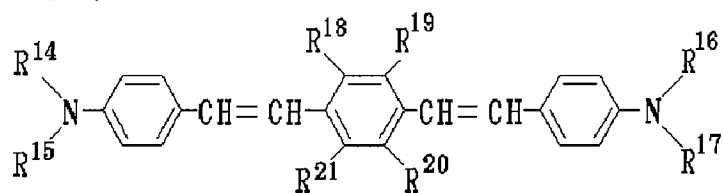
一般式(1)：



(但し、前記一般式(1)において、R⁹、R¹⁰、R¹¹、R¹²及びR¹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化30】

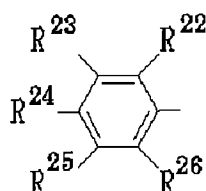
一般式〔Ⅱ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅱ〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（２）で表されるアリール基であり

【化３１】

一般式（２）：

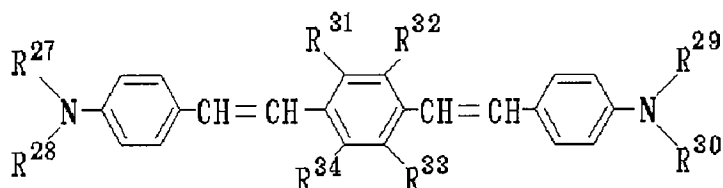


（但し、前記一般式（２）において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。

〕

【化３２】

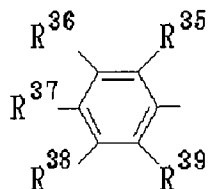
一般式〔Ⅲ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅲ〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも１つが下記一般式（３）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化３３】

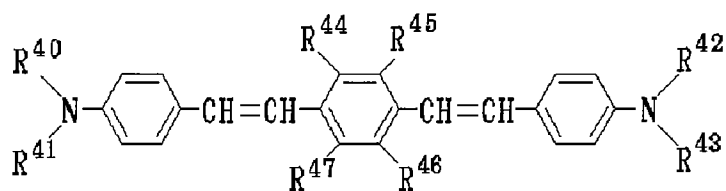
一般式（３）：



（但し、前記一般式（３）において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。）、R³¹、R³²、R³³及びR³⁴は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化３４】

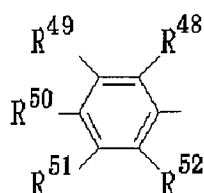
一般式〔IV〕：



〔但し、前記一般式〔IV〕において、 R^{41} 及び R^{42} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（４）で表されるアリール基であり

【化３５】

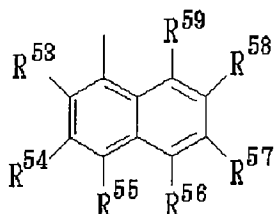
一般式（４）：



（但し、前記一般式（４）において、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 、 R^{51} 及び R^{52} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。） R^{40} 及び R^{43} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（５）で表されるアリール基であり

【化３６】

一般式（５）：

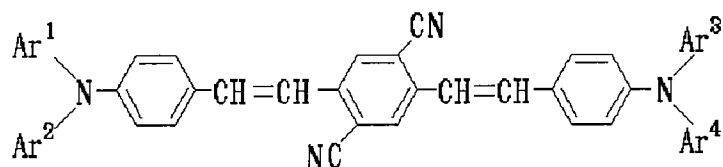


（但し、前記一般式（５）において、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。） R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【請求項１２】 下記一般式で表されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物を得るに際し

【化３７】

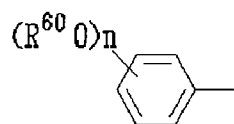
一般式：



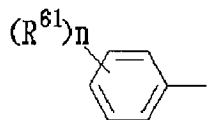
〔但し、前記一般式において、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 はそれぞれ、置換基を有してもよい互いに同一の又は異なるアリール基であって、置換基を有する場合には下記一般式（６）、（７）、（８）及び（９）で表されるアリール基から選ばれた基である。

【化３８】

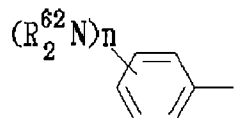
一般式（６）：



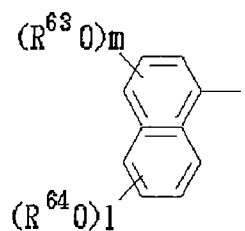
一般式（７）：



一般式（８）：



一般式（９）：

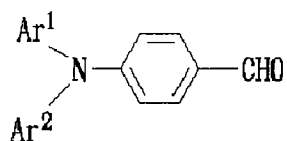


（但し、前記一般式（６）、（７）、（８）及び（９）において、 R^{60} は炭素数２以上の飽和又は不飽和の炭化水素基（或いは、 Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 及び Ar^4 のすべてが、一般式（６）のアリール基である場合には、 R^{60} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基）であり、 R^{61} 及び R^{62} は炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 R^{63} 及び R^{64} は互いに同一の又は異なる炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は０～５の整数であり、 m は０～３の整数であり、 l は０～４の整数である。）］、

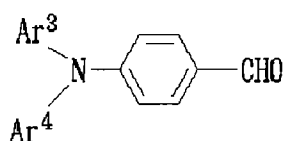
下記一般式（１７）又は（１８）で表される４－（ N ， N －ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドの少なくとも１種と；下記一般式（１９）で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式（２０）で表されるジホスホニウム塩と；を縮合させる、請求項１１に記載したビス（アミノステリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【化３９】

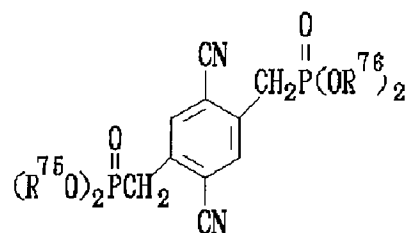
一般式（１７）：



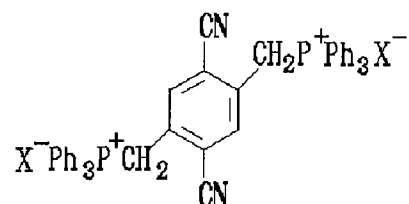
一般式（１８）：



一般式 (19) :



一般式 (20) :

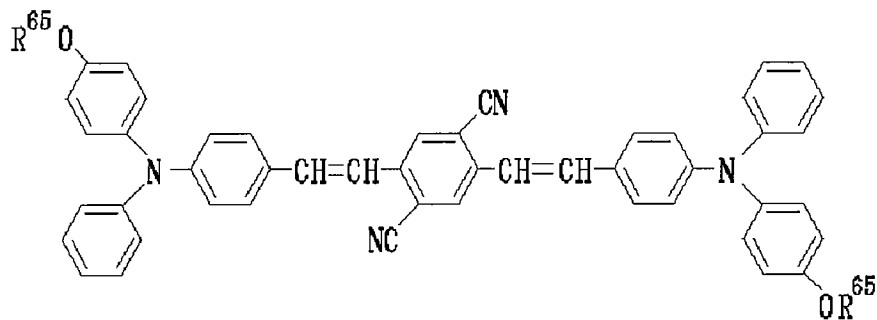


(但し、前記一般式 (17)、(18)、(19) 及び (20) において、Ar¹、Ar²、Ar³、Ar⁴、R⁷⁵、R⁷⁶ 及び X は前記したものと同じである。)

【請求項 13】 下記一般式 (10)、(11)、(12)、(13)、(14)、(15) 又は (15') で表されるビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物を得る、請求項 11 に記載したビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物の製造方法。

【化 40】

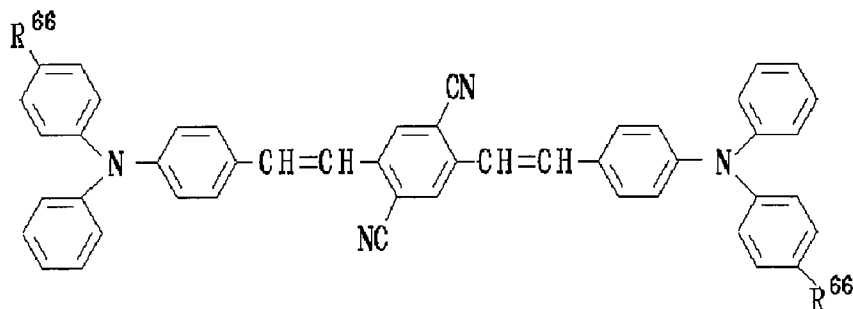
一般式 (10) :



(但し、前記一般式 (10) において、R⁶⁵ は炭素数 2 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

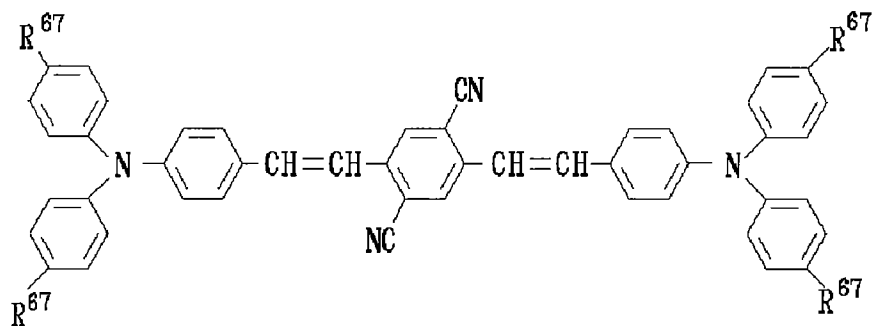
【化 41】

一般式 (11) :



(但し、前記一般式 (11) において、R⁶⁶ は炭素数 1 ~ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

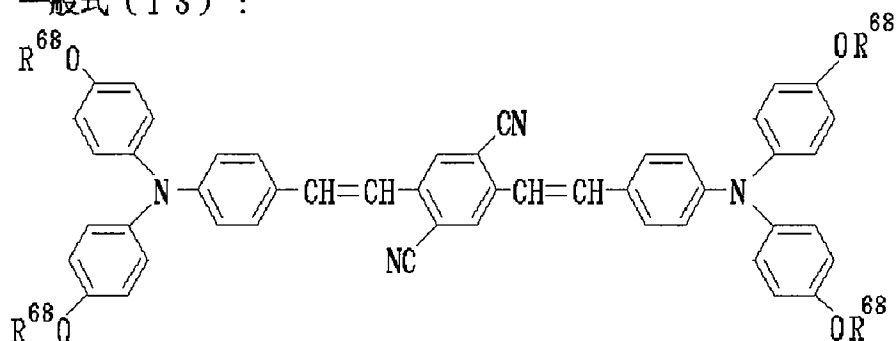
一般式 (12) :



(但し、前記一般式 (12) において、R⁶⁷は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化43】

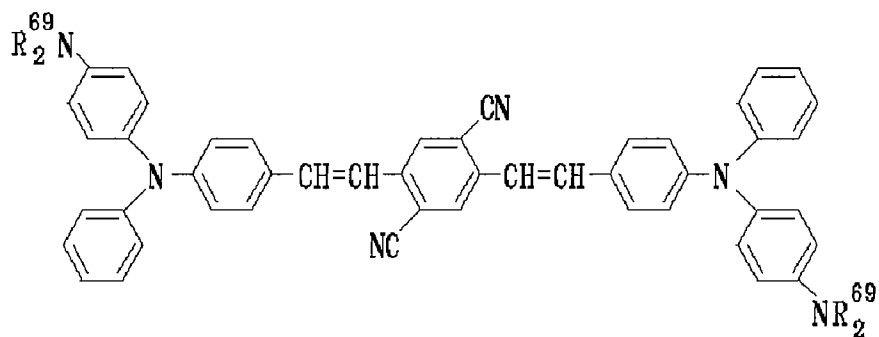
一般式 (13) :



(但し、前記一般式 (13) において、R⁶⁸は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化44】

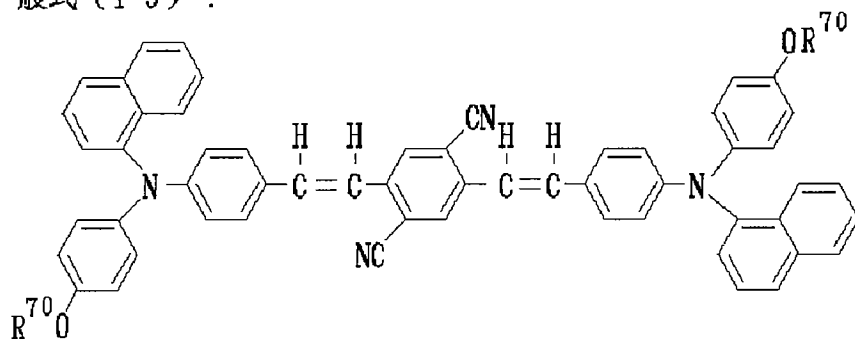
一般式 (14) :



(但し、前記一般式 (14) において、R⁶⁹は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

【化45】

一般式 (15) :

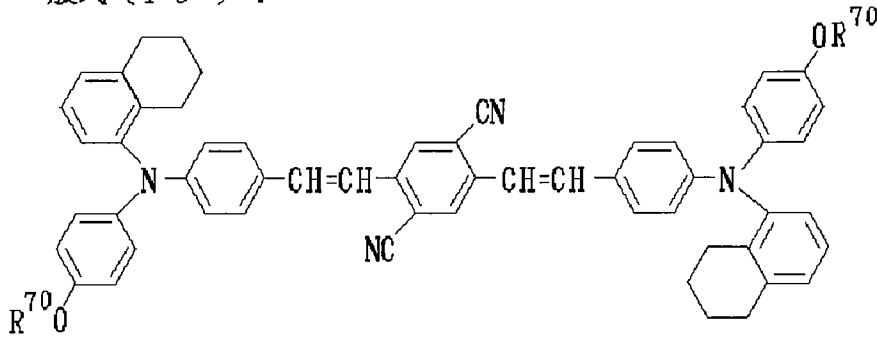


(但し、前記一般式 (15) において、R⁷⁰は炭素数1～6の飽和又は不飽和の炭化水素

基である。)

【化 4 6】

一般式 (15') :

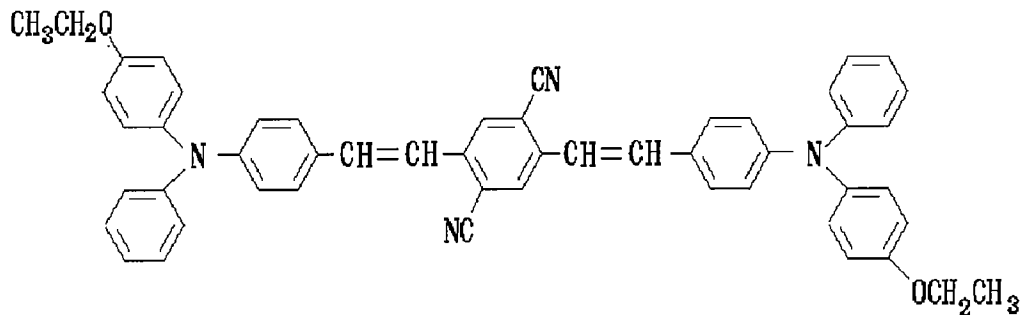


(但し、前記一般式 (15') において、R⁷⁰は炭素数 1～6 の飽和又は不飽和の炭化水素基である。)

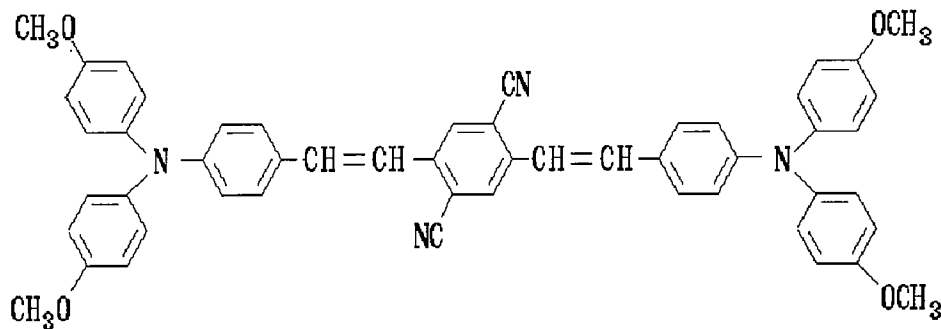
【請求項 14】 下記構造式 (16) - 1、(16) - 2、(16) - 3、(16) - 4、(16) - 5、(16) - 6、(16) - 7、(16) - 8、(16) - 9、(16) - 10、(16) - 11、(16) - 12 又は (16) - 13 で表されるビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物を得る、請求項 11 に記載したビス (アミノスチリル) ベンゼン化合物の製造方法。

【化 4 7】

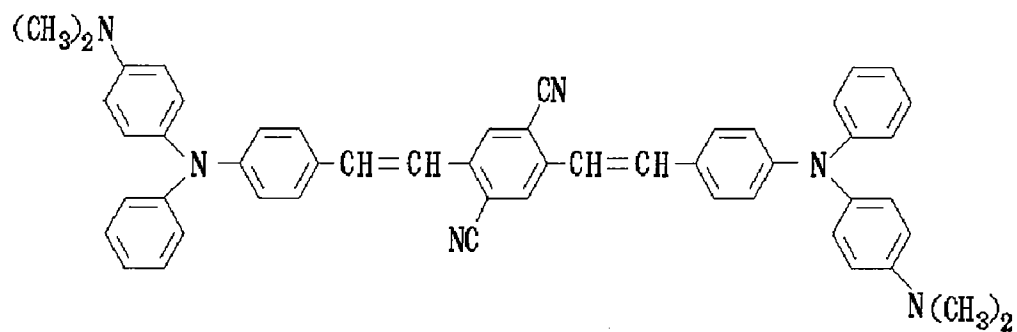
構造式 (16) - 1 :



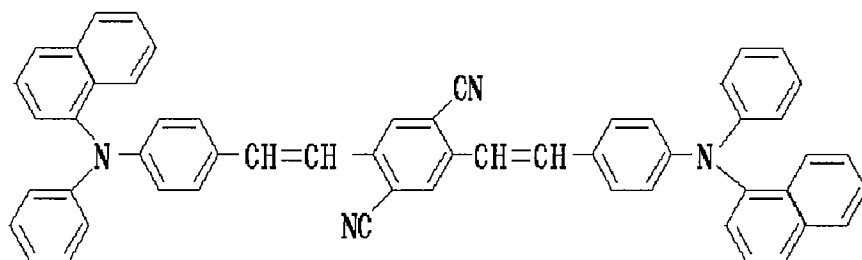
構造式 (16) - 2 :



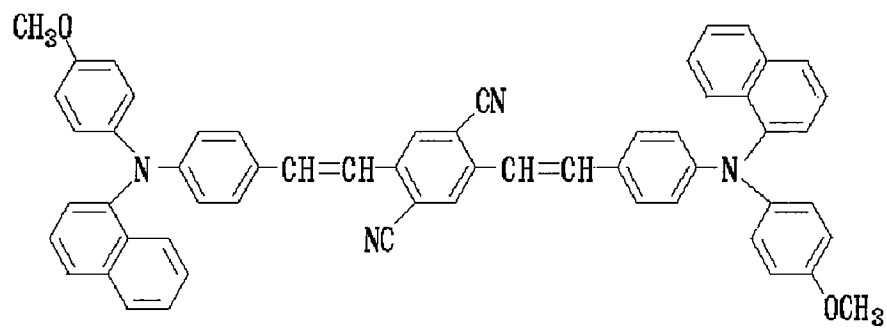
構造式 (16) - 3 :



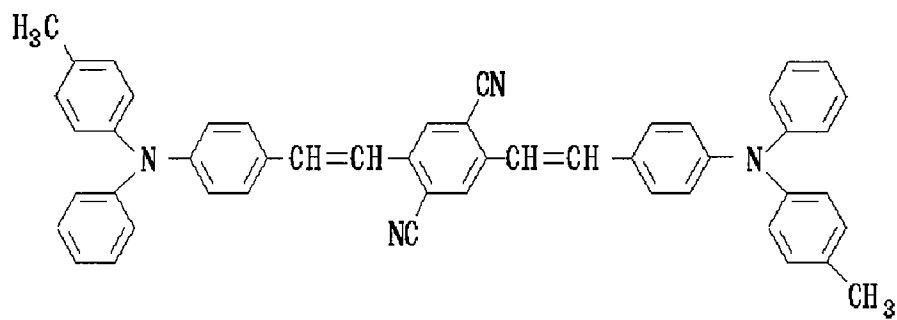
構造式 (16) - 4 :



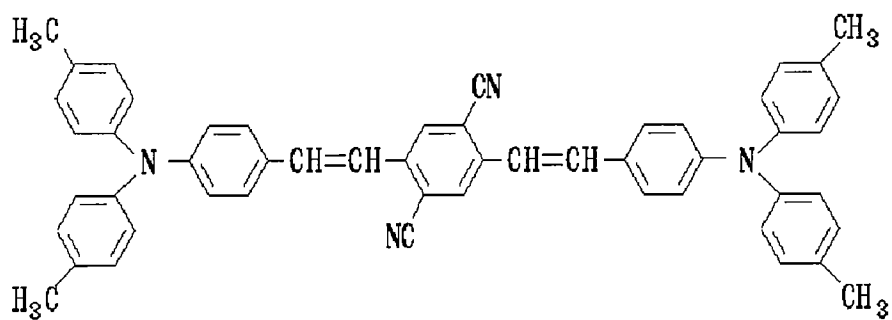
構造式 (16) - 5 :



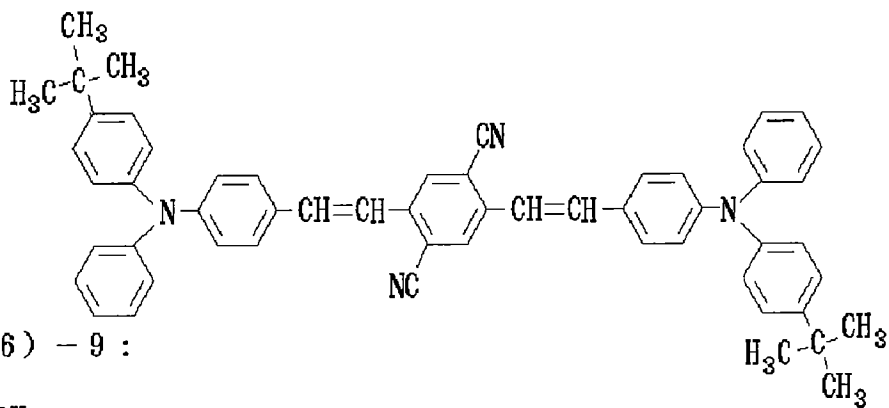
構造式 (16) - 6 :



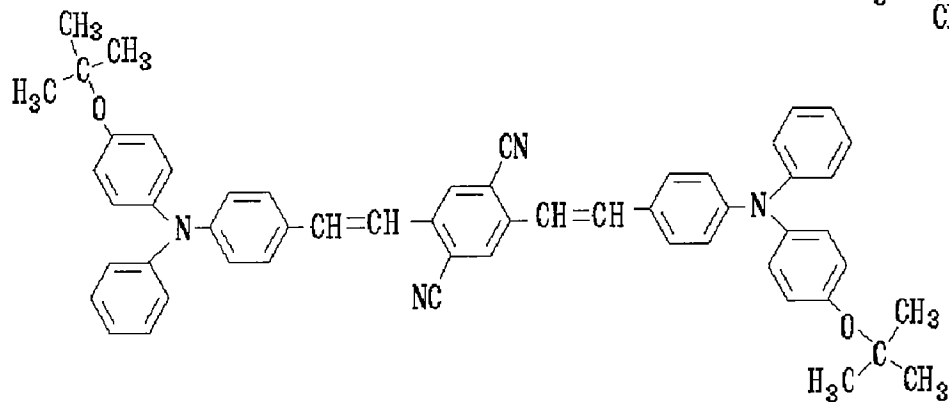
構造式 (16) - 7 :



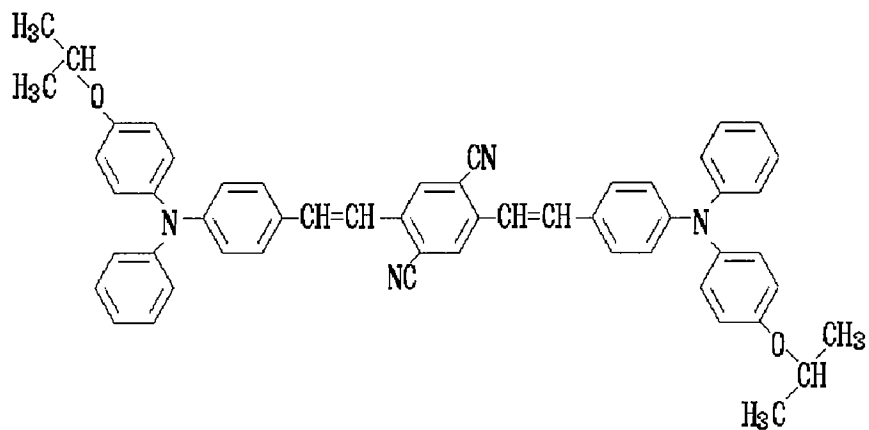
構造式 (16) - 8 :



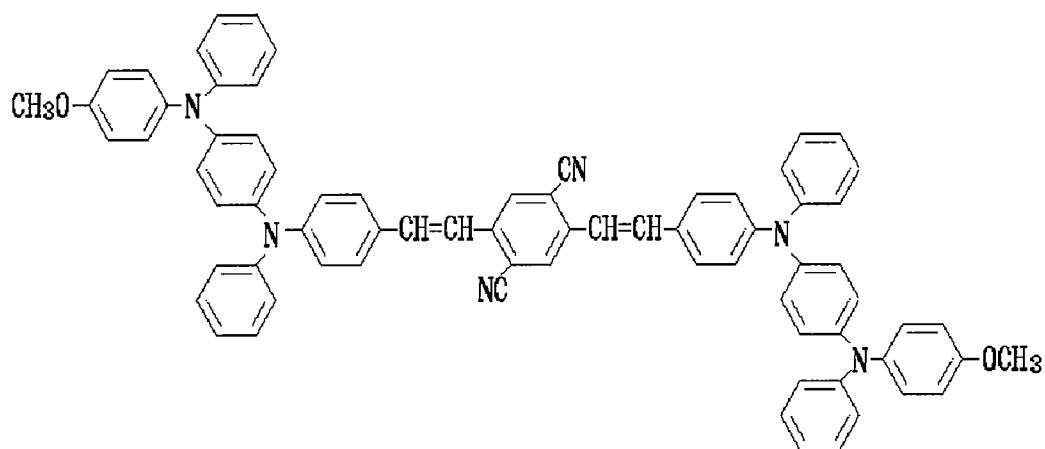
構造式 (16) - 9 :



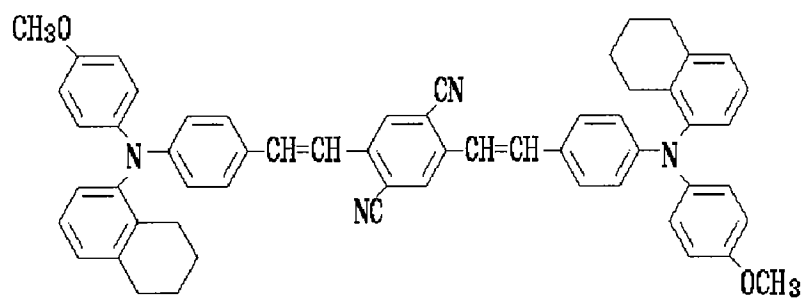
構造式 (16) - 10 :



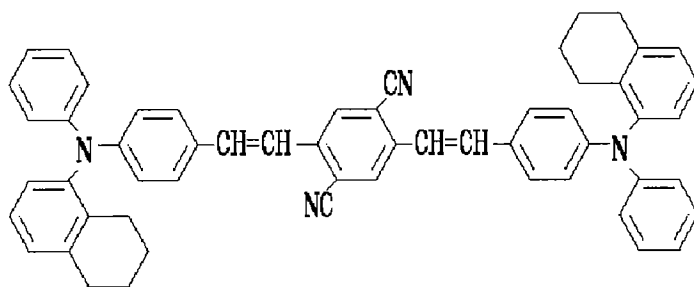
構造式 (16) - 11 :



構造式 (16) - 12 :



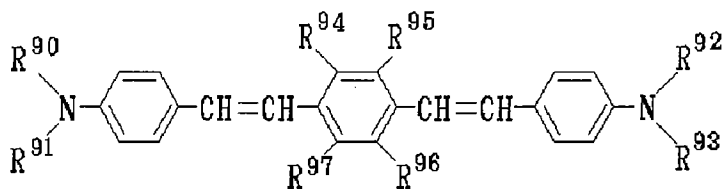
構造式 (16) - 13 :



【請求項 15】 下記一般式〔XIX〕で表されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物を得るに際し

【化 48】

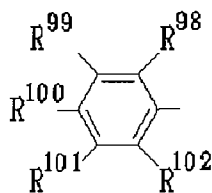
一般式〔XIX〕：



〔但し、前記一般式〔XIX〕において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式（40）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化 49】

一般式（40）：

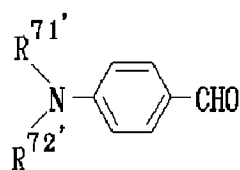


（但し、前記一般式（40）において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R^{100} 、 R^{101} 及び R^{102} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。〕、

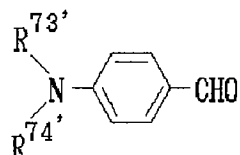
下記一般式〔V'〕又は〔VI'〕で表される4-（N，N-ジアリールアミノ）ベンズアルデヒドの少なくとも一種と；下記一般式〔VII'〕で表されるジホスホン酸エステル又は下記一般式〔VIII'〕で表されるジホスホニウム塩と；を縮合させる、ビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【化 50】

一般式〔V'〕：



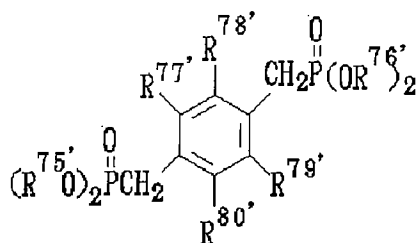
一般式〔VI'〕：



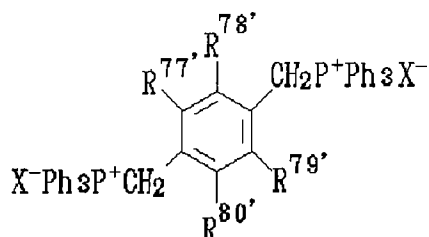
（但し、前記一般式〔V'〕及び〔VI'〕において、 $R^{71'}$ 及び $R^{72'}$ はそれぞれ、前記 R^{90} 又は R^{91} に相当するアリール基であり、 $R^{73'}$ 及び $R^{74'}$ はそれぞれ、前記 R^{92} 又は R^{93} に相当するアリール基である。）

【化 51】

一般式〔VII'〕：



一般式〔VIII'〕：

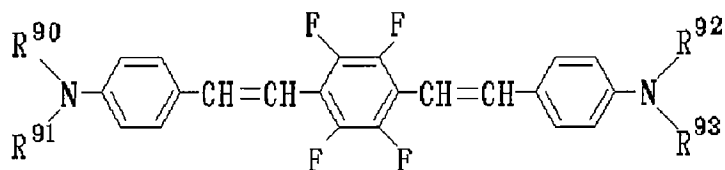


（但し、前記一般式〔VII'〕及び〔VIII'〕において、 $R^{75'}$ 及び $R^{76'}$ はそれぞれ、互いに同一の又は異なる炭化水素基であり、 $R^{77'}$ 、 $R^{78'}$ 、 $R^{79'}$ 及び $R^{80'}$ はそれぞれ、前記 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 又は R^{97} に相当する基であり、 X はハロゲン原子である。）

【請求項 16】 下記一般式〔XX〕で表されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物を得る、請求項 15 に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【化 5 2】

一般式〔XX〕：

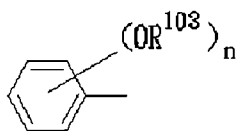


〔但し、前記一般式〔XX〕において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は前記したものと同じである。〕

【請求項 17】 前記 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} を少なくとも 1 つが下記一般式（41）で表されるアリール基とし、残りを無置換のアリール基とする、請求項 16 に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【化 5 3】

一般式（41）：

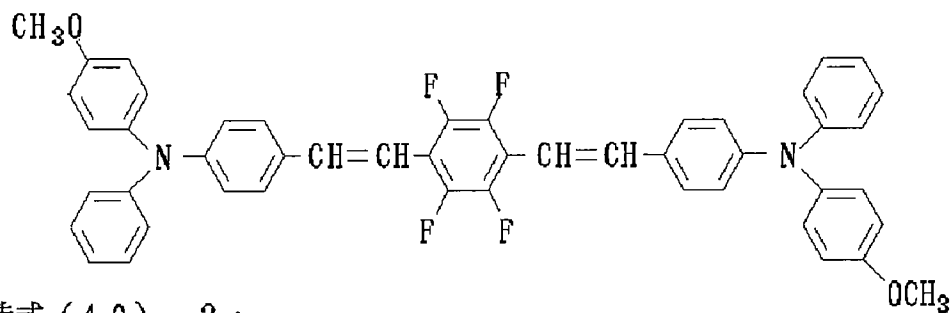


（但し、前記一般式（41）において、 R^{103} は炭素数が 1 ～ 6 の飽和又は不飽和の炭化水素基であり、 n は 0 ～ 5 の整数である。）。

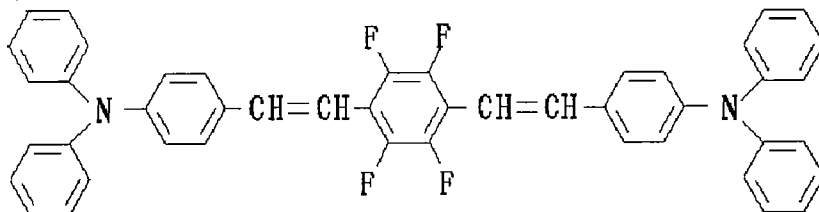
【請求項 18】 下記構造式（40）-1、（40）-2、（40）-3、（40）-4、（40）-5、（40）-6 又は（40）-7 で示されるビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物を得る、請求項 16 に記載したビス（アミノスチリル）ベンゼン化合物の製造方法。

【化 5 4】

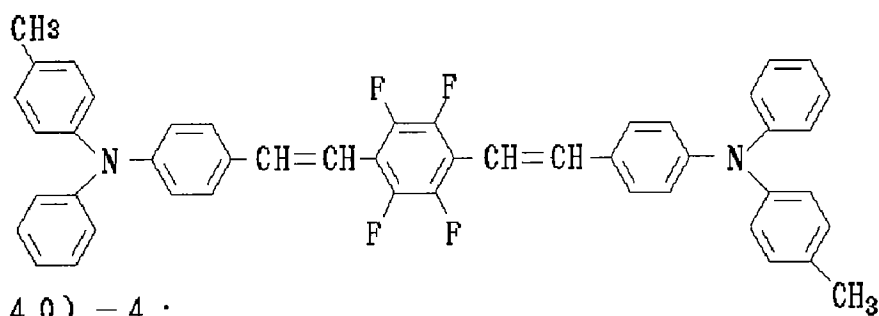
構造式 (40) - 1 :



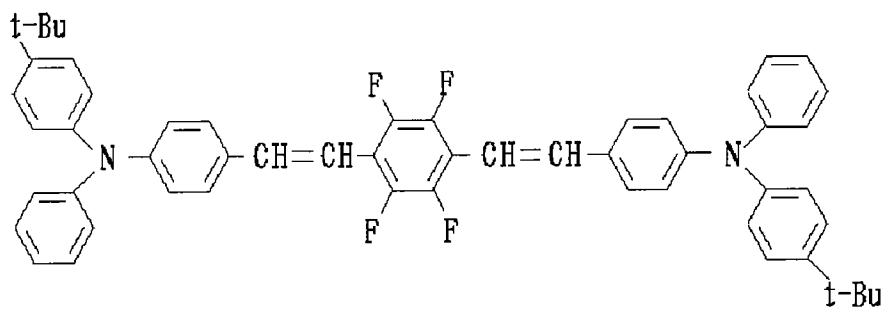
構造式 (40) - 2 :



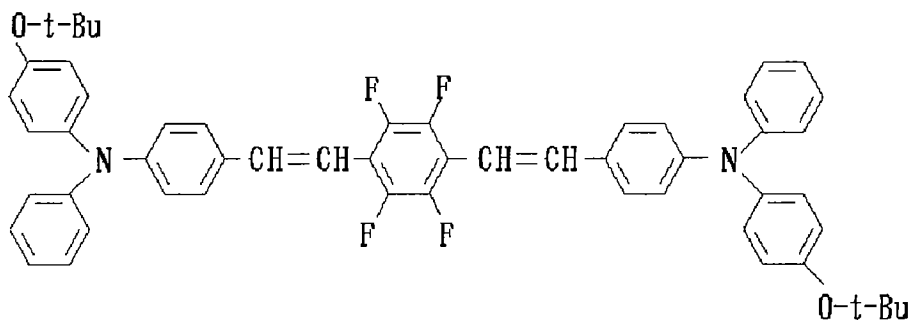
構造式 (40) - 3 :



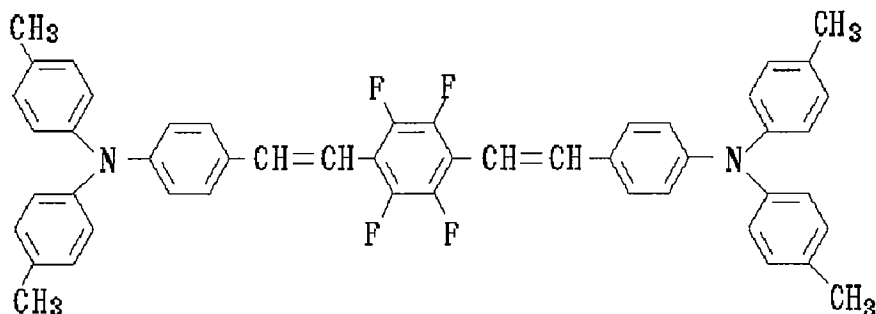
構造式 (40) - 4 :



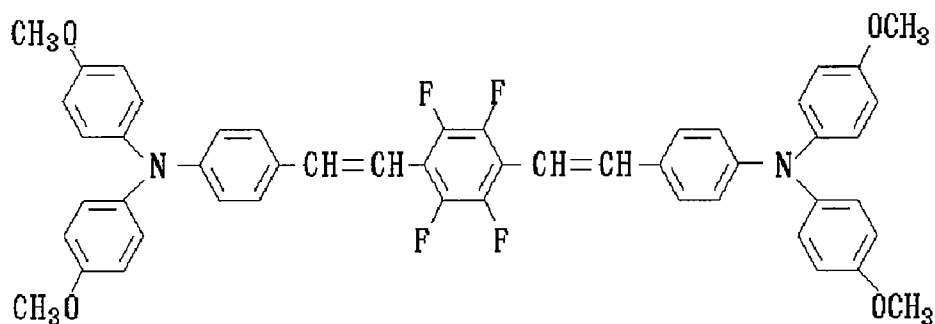
構造式(40) - 5 :



構造式(40) - 6 :



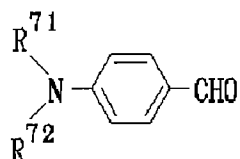
構造式(40) - 7 :



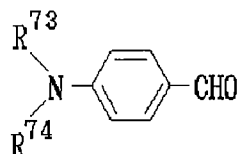
【請求項19】 下記一般式〔V〕又は〔VI〕で表され、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられる4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化55】

一般式〔V〕 :



一般式〔VI〕 :

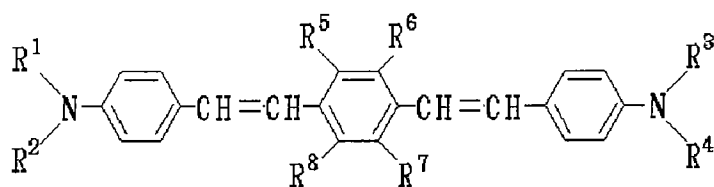


(但し、前記一般式〔V〕及び〔VI〕において、 R^{71} 及び R^{72} はそれぞれ、下記 R^1 、 R^2 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{40} 又は R^{41} に相当するアリール基であり、 R^{73} 及び R^{74} はそれぞれ、下記 R^3 、 R^4 、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{42} 又は R^{43} に相当するアリール基

である。)

【化 5 6】

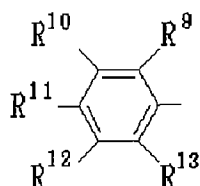
一般式〔I〕：



〔但し、前記一般式〔I〕において、R²及びR³は無置換のアリール基であり、R¹及びR⁴は下記一般式（1）で表されるアリール基であり

【化 5 7】

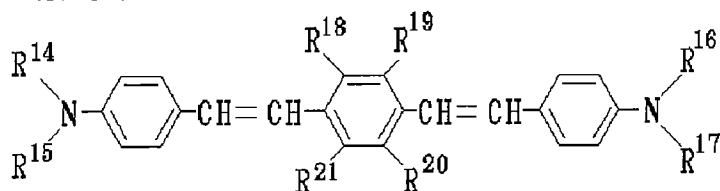
一般式（1）：



（但し、前記一般式（1）において、R⁹、R¹⁰、R¹¹、R¹²及びR¹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化 5 8】

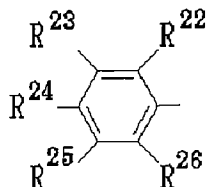
一般式〔II〕：



〔但し、前記一般式〔II〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（2）で表されるアリール基であり

【化 5 9】

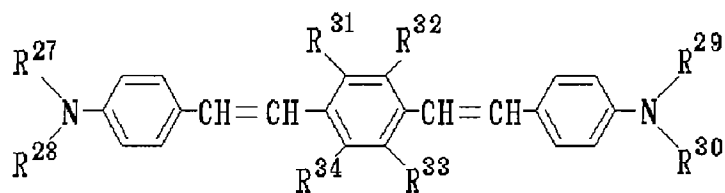
一般式（2）：



（但し、前記一般式（2）において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

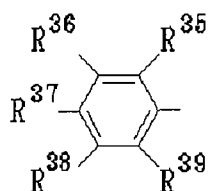
【化 6 0】

一般式〔Ⅲ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅲ〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも1つが下記一般式（3）で表わされるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり
【化61】

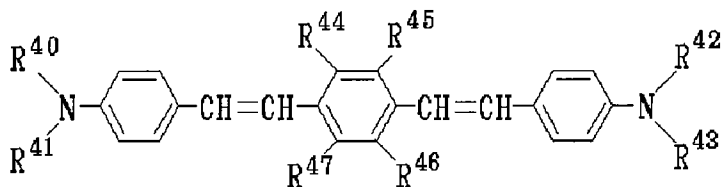
一般式（3）：



（但し、前記一般式（3）において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。）、R³¹、R³²、R³³及びR³⁴は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）

【化62】

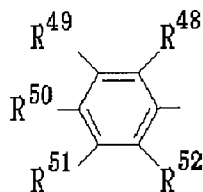
一般式〔Ⅳ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅳ〕において、R⁴¹及びR⁴²は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（4）で表わされるアリール基であり

【化63】

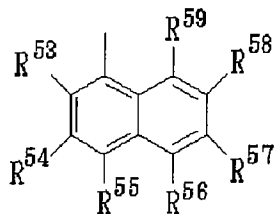
一般式（4）：



（但し、前記一般式（4）において、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰、R⁵¹及びR⁵²は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R⁴⁰及びR⁴³は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（5）で表わされるアリール基であり

【化64】

一般式 (5) :

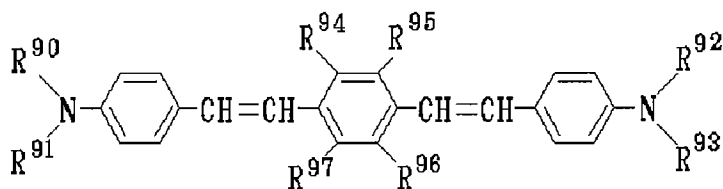


(但し、前記一般式 (5) において、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸及びR⁵⁹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶及びR⁴⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【請求項20】 下記一般式〔V'〕又は〔VI'〕で表され、下記一般式〔XIX〕で示されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられる4-(N, N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒド。

【化65】

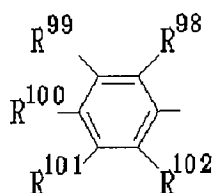
一般式〔XIX〕:



(但し、前記一般式〔XIX〕において、R⁹⁰、R⁹¹、R⁹²及びR⁹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式(40)で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化66】

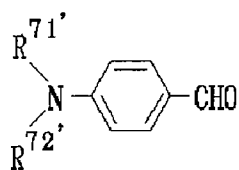
一般式(40):



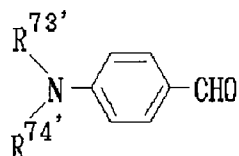
(但し、前記一般式(40)において、R⁹⁸、R⁹⁹、R¹⁰⁰、R¹⁰¹及びR¹⁰²は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁹⁴、R⁹⁵、R⁹⁶及びR⁹⁷は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。)、

【化67】

一般式〔V'〕:



一般式〔VI'〕:

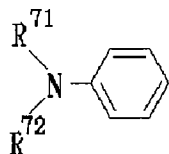


(但し、前記一般式〔V'〕及び〔VI'〕において、R^{71'}及びR^{72'}はそれぞれ、前記R⁹⁰又はR⁹¹に相当するアリール基であり、R^{73'}及びR^{74'}はそれぞれ、前記R⁹²又はR⁹³に相当するアリール基である。)

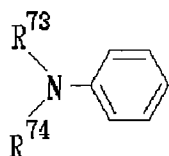
【請求項21】 下記一般式〔IX〕又は〔X〕、或いは下記一般式〔IX'〕又は〔X'〕で表されるトリアリールアミンをジメチルホルムアミドとオキシ塩化リンとの付加体によってホルミル化し、これによって、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕、或いは下記一般式〔XIX〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられかつ下記一般式〔V〕又は〔VI〕、或いは下記一般式〔V'〕又は〔VI'〕で表される4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドを得る、4-(N,N-ジアリールアミノ)ベンズアルデヒドの製造方法。

【化68】

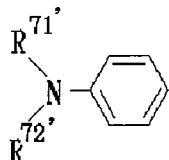
一般式〔IX〕：



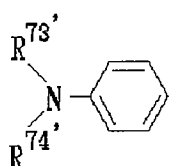
一般式〔X〕：



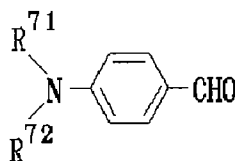
一般式〔IX'〕：



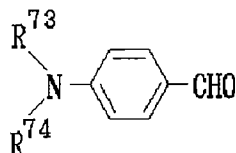
一般式〔X'〕：



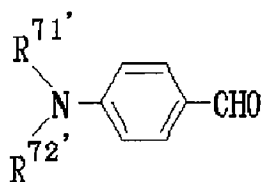
一般式〔V〕：



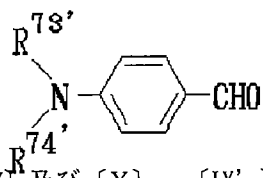
一般式〔VI〕：



一般式〔V'〕：



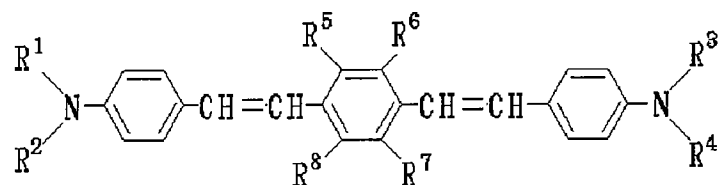
一般式〔VI'〕：



(但し、前記一般式〔IX〕及び〔X〕、〔IX'〕及び〔X'〕、〔V〕及び〔VI〕、〔V'〕及び〔VI'〕において、R⁷¹及びR⁷²はそれぞれ、下記R¹、R²、R¹⁴、R¹⁵、R²⁷、R²⁸、R⁴⁰又はR⁴¹に相当するアリール基であり、R^{71'}及びR^{72'}はそれぞれ、下記R⁹⁰又はR⁹¹に相当するアリール基であり、R⁷³及びR⁷⁴はそれぞれ、下記R³、R⁴、R¹⁶、R¹⁷、R²⁹、R³⁰、R⁴²又はR⁴³に相当するアリール基であり、R^{73'}及びR^{74'}はそれぞれ、下記R⁹²又はR⁹³に相当するアリール基である。)

【化69】

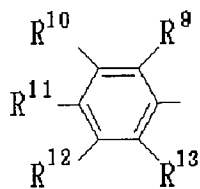
一般式〔I〕：



〔但し、前記一般式〔I〕において、R²及びR³は無置換のアリール基であり、R¹及びR⁴は下記一般式(1)で表されるアリール基であり

【化70】

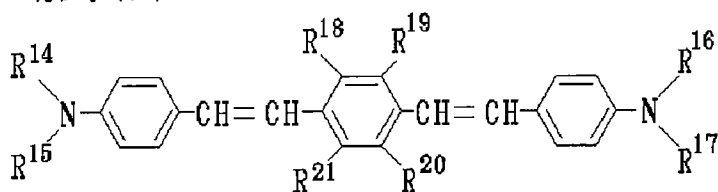
一般式(1)：



(但し、前記一般式(1)において、R⁹、R¹⁰、R¹¹、R¹²及びR¹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが炭素数2以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化71】

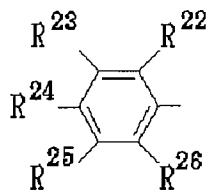
一般式〔II〕：



〔但し、前記一般式〔II〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(2)で表されるアリール基であり

【化7 2】

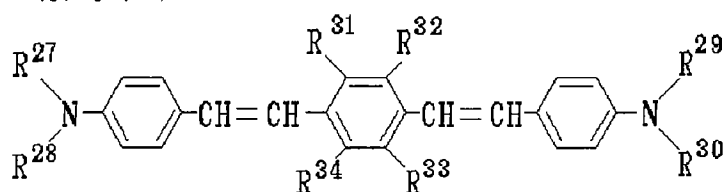
一般式(2) :



(但し、前記一般式(2)において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化7 3】

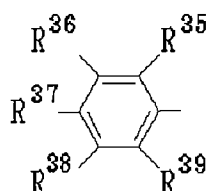
一般式〔Ⅲ〕 :



[但し、前記一般式〔III〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも1つが下記一般式(3)で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化7 4】

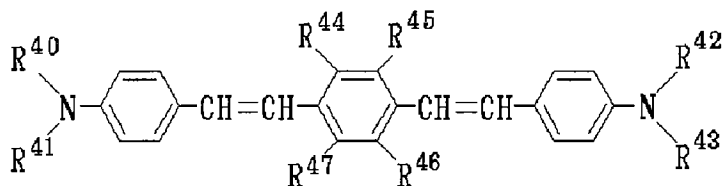
一般式(3) :



(但し、前記一般式(3)において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。)、R³¹、R³²、R³³及びR³⁴は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化7 5】

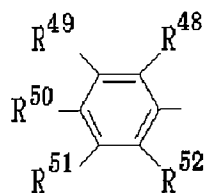
一般式〔Ⅳ〕 :



[但し、前記一般式〔IV〕において、R⁴¹及びR⁴²は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(4)で表されるアリール基であり

【化7 6】

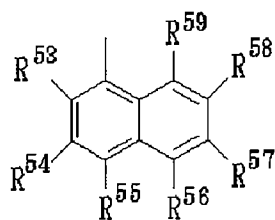
一般式（４）：



（但し、前記一般式（４）において、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰、R⁵¹及びR⁵²は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）
 R⁴⁰及びR⁴³は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（５）で表されるアリール基であり

【化７７】

一般式（５）：

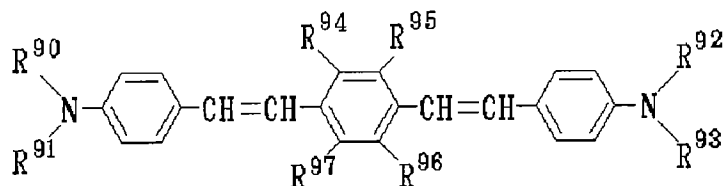


（但し、前記一般式（５）において、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸及びR⁵⁹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）

R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶及びR⁴⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化７８】

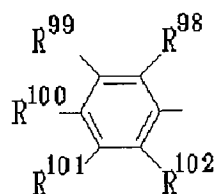
一般式〔XIX〕：



〔但し、前記一般式〔XIX〕において、R⁹⁰、R⁹¹、R⁹²及びR⁹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが下記一般式（４０）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化７９】

一般式（４０）：



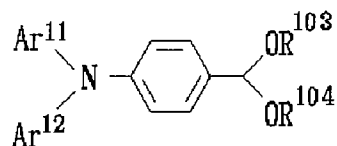
（但し、前記一般式（４０）において、R⁹⁸、R⁹⁹、R¹⁰⁰、R¹⁰¹及びR¹⁰²は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが水素原子、炭素数１以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）
 R⁹⁴、R⁹⁵、R⁹⁶及びR⁹⁷は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも１つがフッ素原子である。]

【請求項２２】 下記一般式（４４）、（４５）又は（４６）で表されるアセタール化合物を、ケトン溶媒中、酸触媒又は塩基触媒の存在下でアセタール交換させることによ

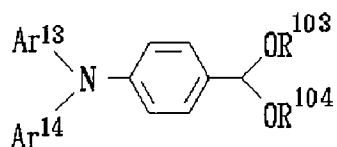
り、下記一般式（５７）、（５８）又は（５９）で表される４－（Ｎ，Ｎ－ジアリールアミノ）ベンズアルデヒド化合物を得る、４－（Ｎ，Ｎ－ジアリールアミノ）ベンズアルデヒド化合物の製造方法。

【化８０】

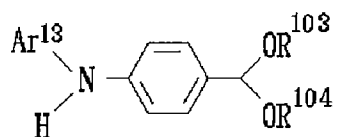
一般式（４４）：



一般式（４５）：



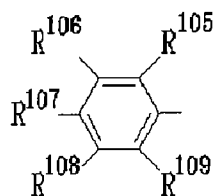
一般式（４６）：



〔但し、前記一般式（４４）及び（４５）において、Ａｒ¹¹、Ａｒ¹²、Ａｒ¹³及びＡｒ¹⁴は、互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（４７）で表されるアリール基であり、

【化８１】

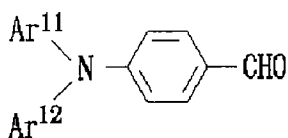
一般式（４７）：



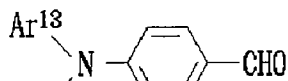
（但し、前記一般式（４７）において、Ｒ¹⁰⁵、Ｒ¹⁰⁶、Ｒ¹⁰⁷、Ｒ¹⁰⁸及びＲ¹⁰⁹は、互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、炭化水素基、炭化水素オキシ基又は炭化水素アミノ基から選ばれた基である。）、Ｒ¹⁰³及びＲ¹⁰⁴は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、Ｒ¹⁰³とＲ¹⁰⁴とが炭素鎖によってつながれた構造をとってもよい。〕

【化８２】

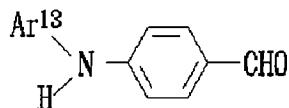
一般式（５７）：



一般式（５８）：



一般式 (59) :

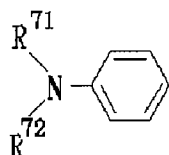


(但し、前記一般式 (57)、(58) 及び (59) において、Ar¹¹、Ar¹²、Ar¹³ 及び Ar¹⁴ は前記したものと同じである。)

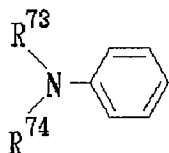
【請求項 23】 下記一般式〔IX〕又は〔X〕、或いは下記一般式〔IX'〕又は〔X'〕で表され、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕、或いは下記一般式〔XIX〕で表されるビス(アミノスチリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられるトリアリールアミン。

【化 83】

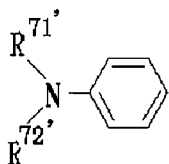
一般式〔IX〕 :



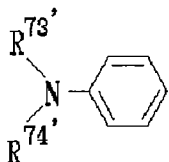
一般式〔X〕 :



一般式〔IX'〕 :



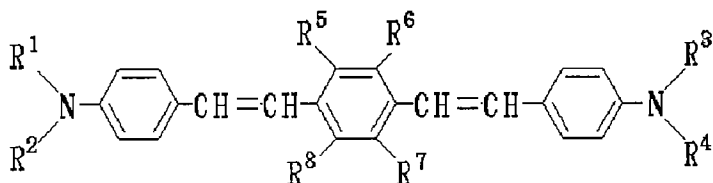
一般式〔X'〕 :



(但し、前記一般式〔IX〕及び〔X〕、〔IX'〕及び〔X'〕において、R⁷¹及びR⁷²はそれぞれ、下記R¹、R²、R¹⁴、R¹⁵、R²⁷、R²⁸、R⁴⁰又はR⁴¹に相当するアリール基であり、R^{71'}及びR^{72'}はそれぞれ、下記R⁹⁰又はR⁹¹に相当するアリール基であり、R⁷³及びR⁷⁴はそれぞれ、下記R³、R⁴、R¹⁶、R¹⁷、R²⁹、R³⁰、R⁴²又はR⁴³に相当するアリール基であり、R^{73'}及びR^{74'}はそれぞれ、下記R⁹²又はR⁹³に相当するアリール基である。)

【化 84】

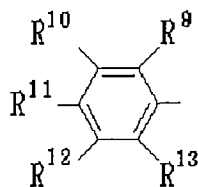
一般式〔I〕 :



R⁴は下記一般式（１）で表されるアリール基であり

【化 8 5】

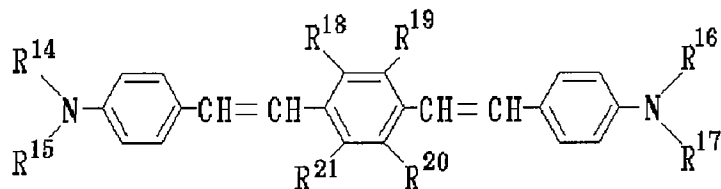
一般式（１）：



（但し、前記一般式（１）において、R⁹、R¹⁰、R¹¹、R¹²及びR¹³は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが炭素数２以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）

【化 8 6】

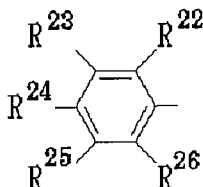
一般式〔Ⅱ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅱ〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（２）で表されるアリール基であり

【化 8 7】

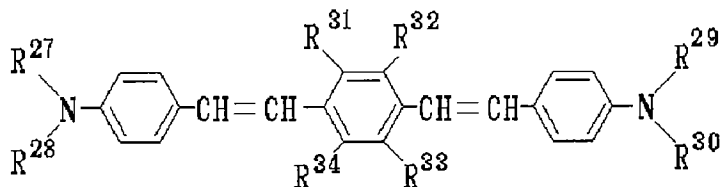
一般式（２）：



（但し、前記一般式（２）において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。）

【化 8 8】

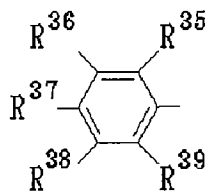
一般式〔Ⅲ〕：



〔但し、前記一般式〔Ⅲ〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも１つが下記一般式（３）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化 8 9】

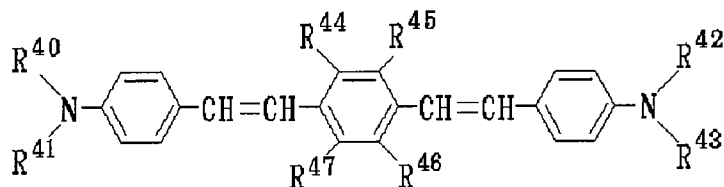
一般式 (3) :



(但し、前記一般式 (3) において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。)、R³¹、R³²、R³³及びR³⁴は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化90】

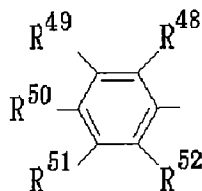
一般式 (IV) :



[但し、前記一般式 (IV) において、R⁴¹及びR⁴²は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4) で表されるアリール基であり

【化91】

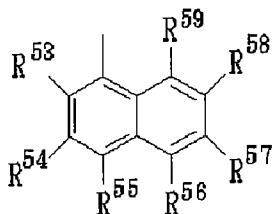
一般式 (4) :



(但し、前記一般式 (4) において、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁵⁰、R⁵¹及びR⁵²は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁴⁰及びR⁴³は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (5) で表されるアリール基であり

【化92】

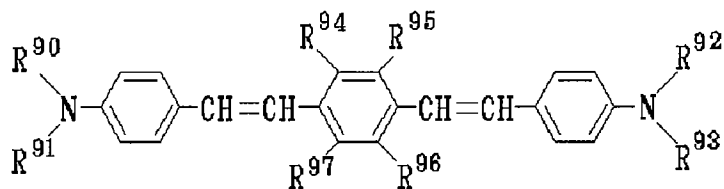
一般式 (5) :



(但し、前記一般式 (5) において、R⁵³、R⁵⁴、R⁵⁵、R⁵⁶、R⁵⁷、R⁵⁸及びR⁵⁹は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶及びR⁴⁷は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化93】

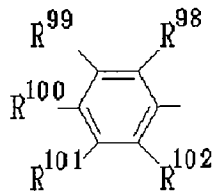
一般式 (XIX) :



〔但し、前記一般式 (XIX) において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが下記一般式 (40) で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化94】

一般式 (40) :

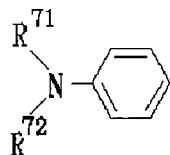


〔但し、前記一般式 (40) において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R^{100} 、 R^{101} 及び R^{102} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも一つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。〕

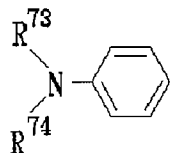
【請求項24】 下記一般式〔IX〕又は〔X〕、或いは下記一般式〔IX'〕又は〔X'〕で表され、下記一般式〔I〕、〔II〕、〔III〕又は〔IV〕、或いは下記一般式〔XIX〕で表されるビス(アミノステリル)ベンゼン化合物の合成中間体として用いられるトリアリールアミンを製造するに際し、下記一般式〔XI〕又は〔XI'〕で表されるジアリールアミンと下記一般式〔XII〕又は〔XII'〕で表されるハロゲン化ベンゼンを触媒及び塩基の存在下でカップリングさせるか、或いは、下記一般式〔XIII〕又は〔XIII'〕で表されるジアリールアミンと下記一般式〔XIV〕又は〔XIV'〕で表されるハロゲン化アリール化合物とを触媒及び塩基の存在下でカップリングさせる、トリアリールアミンの製造方法。

【化95】

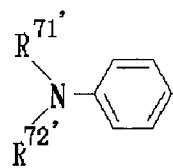
一般式 (IX) :



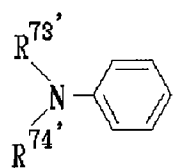
一般式 (X) :



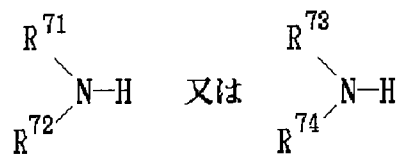
一般式 (IX') :



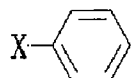
一般式 (X') :



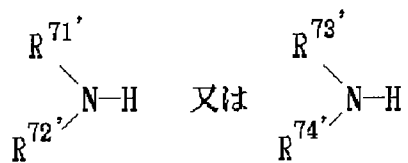
一般式 (XI) :



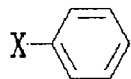
一般式 (XII) :



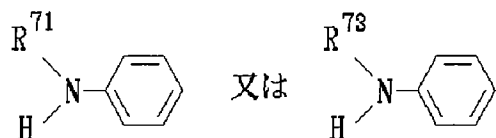
一般式 (XI') :



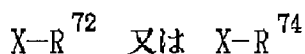
一般式 (XII') :



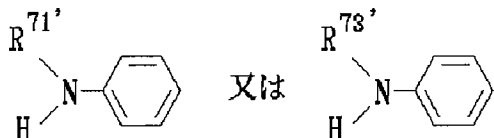
一般式 (XIII) :



一般式 (XIV) :



一般式 (XIII') :



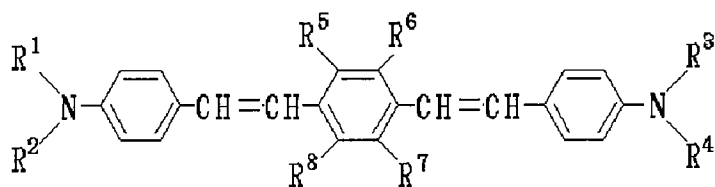
一般式 (XIV') :



(但し、前記一般式 (IX) 及び (X)、(IX') 及び (X')、(XI) 及び (XII)、(XI') 及び (XII')、(XIII) 及び (XIV)、(XIII') 及び (XIV') において、 R^{71} 及び R^{72} はそれぞれ、下記 R^1 、 R^2 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{40} 又は R^{41} に相当するアリール基であり、 $R^{71'}$ 及び $R^{72'}$ はそれぞれ、下記 R^{90} 又は R^{91} に相当するアリール基であり、 R^{73} 及び R^{74} はそれぞれ、下記 R^3 、 R^4 、 R^{16} 、 R^{17} 、 R^{29} 、 R^{30} 、 R^{42} 又は R^{43} に相当するアリール基であり、 $R^{73'}$ 及び $R^{74'}$ はそれぞれ、下記 R^{92} 又は R^{93} に相当するアリール基であり、 X はハロゲン原子である。)

【化 9 6】

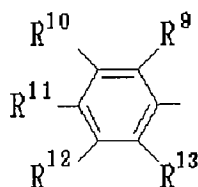
一般式 (I) :



(但し、前記一般式 (I) において、 R^2 及び R^3 は無置換のアリール基であり、 R^1 及び R^4 は下記一般式 (1) で表されるアリール基であり

【化 9 7】

一般式 (1) :

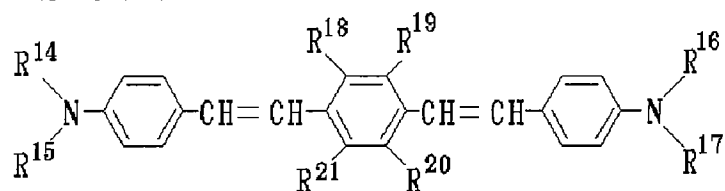


(但し、前記一般式 (1) において、 R^9 、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} 及び R^{13} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも 1 つが炭素数 2 以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^5 、 R^6 、 R^7 及び R^8 は互いに同一の又は異なる

る基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化98】

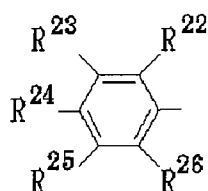
一般式〔II〕：



〔但し、前記一般式〔II〕において、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶及びR¹⁷は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（2）で表されるアリール基であり

【化99】

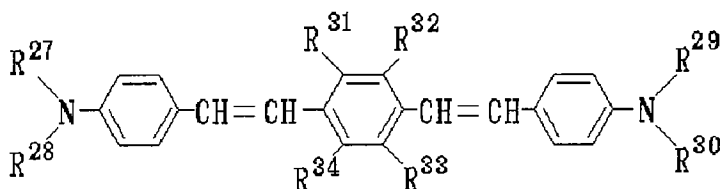
一般式（2）：



（但し、前記一般式（2）において、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵及びR²⁶は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。）、R¹⁸、R¹⁹、R²⁰及びR²¹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化100】

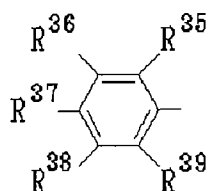
一般式〔III〕：



〔但し、前記一般式〔III〕において、R²⁷、R²⁸、R²⁹及びR³⁰は、少なくとも1つが下記一般式（3）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化101】

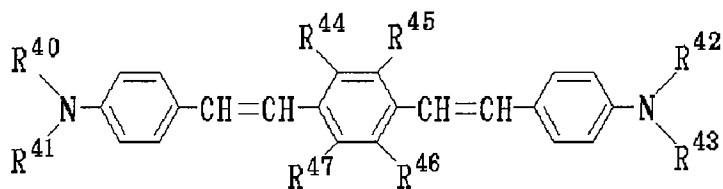
一般式（3）：



（但し、前記一般式（3）において、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸及びR³⁹は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが飽和又は不飽和の炭化水素アミノ基である。）、R³¹、R³²、R³³及びR³⁴は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。]

【化102】

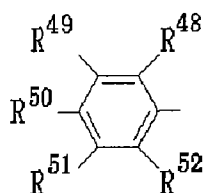
一般式〔IV〕：



〔但し、前記一般式〔IV〕において、 R^{41} 及び R^{42} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（４）で表されるアリール基であり

【化１０３】

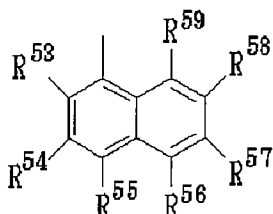
一般式（４）：



（但し、前記一般式（４）において、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 、 R^{51} 及び R^{52} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。） R^{40} 及び R^{43} は互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式（５）で表されるアリール基であり

【化１０４】

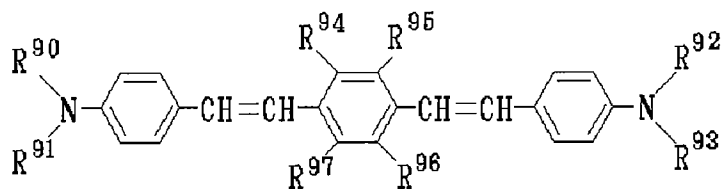
一般式（５）：



（但し、前記一般式（５）において、 R^{53} 、 R^{54} 、 R^{55} 、 R^{56} 、 R^{57} 、 R^{58} 及び R^{59} は互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、又はそれらの少なくとも１つが飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。） R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 及び R^{47} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが水素原子、シアノ基、ニトロ基又はハロゲン原子である。〕

【化１０５】

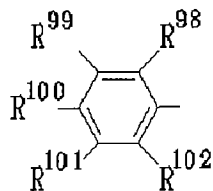
一般式〔XIX〕：



〔但し、前記一般式〔XIX〕において、 R^{90} 、 R^{91} 、 R^{92} 及び R^{93} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも１つが下記一般式（４０）で表されるアリール基であり、残りが無置換のアリール基であり

【化１０６】

一般式(40)：



(但し、前記一般式(40)において、 R^{98} 、 R^{99} 、 R^{100} 、 R^{101} 及び R^{102} は互いに同一の又は異なる基であって、それらの少なくとも1つが水素原子、炭素数1以上の飽和又は不飽和の炭化水素オキシ基、又は炭化水素基である。)、 R^{94} 、 R^{95} 、 R^{96} 及び R^{97} は互いに同一の又は異なる、水素原子又はハロゲン原子から選ばれた基であって、それらの少なくとも1つがフッ素原子である。]

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0069

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0069】

本発明では、本発明の第1及び第2の化合物の合成中間体として、前記一般式〔VII〕又は〔VII'〕で表されるジホスホン酸エステルまたは前記一般式〔VIII〕又は〔VIII'〕で表されるジホスホニウム塩（以下、合成中間体3と称する。）を用いるのがよい。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0072

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0072】

この合成中間体3は、その前駆体としての合成中間体から次のようにして導くことができる。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0076

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0076】

合成中間体3を得るための合成中間体として、前記一般式〔XV〕又は〔XV'〕で表されるハロゲン化アリール化合物（以下、合成中間体4と称する。）を用いるのがよい。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0077

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0077】

この合成中間体4は、下記一般式〔XVII〕又は〔XVII'〕で表されるキシレン化合物と、下記一般式〔XVIII〕で表されるN-ハロゲン化スクシンイミドとを光照射下に反応させることによって得ることができる。例えば、四塩化炭素、クロロホルム、ベンゼン等の溶媒中、高圧水銀灯、低圧水銀灯、キセノン灯、ハロゲン灯等の光源を用いて100～500Wの光の照射下に、20～60℃の温度、常圧で30分～48時間の反応時間で反応させる。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0082

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0082】

本発明の第1及び第2の化合物の合成中間体として更に好適な化合物がある。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0083

【補正方法】変更

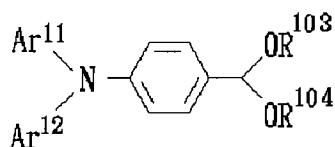
【補正の内容】

【0083】

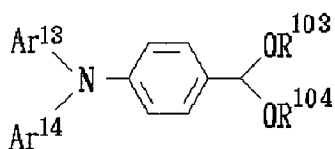
即ち、この合成中間体は、下記一般式(44)、(45)又は(46)で表されるアセタール化合物(以下、合成中間体5と称する。)である。

【化234】

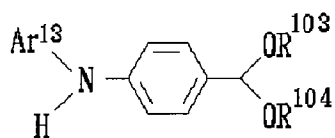
一般式(44)：



一般式(45)：



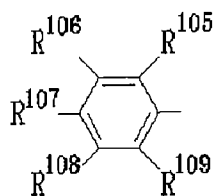
一般式(46)：



〔但し、前記一般式(44)、(45)及び(46)において、Ar¹¹、Ar¹²、Ar¹³及びAr¹⁴は、互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式(47)で表されるアリール基であり

【化235】

一般式(47)：



(但し、前記一般式(47)において、R¹⁰⁵、R¹⁰⁶、R¹⁰⁷、R¹⁰⁸及びR¹⁰⁹は、互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、炭化水素基、炭化水素オキシ基又は炭化水素アミノ基から選ばれた基である。)、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R¹⁰³とR¹⁰⁴が炭素鎖によってつながれた構造をとってもよい。]

【補正対象項目名】 0084

【補正方法】 変更

【補正の内容】

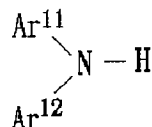
【0084】

この合成中間体5を得るに際し、

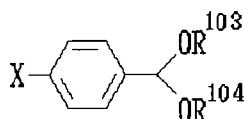
前記一般式(44)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(48)で表されるアミン化合物と下記一般式(49)で表されるアセタール化合物とをカップリングさせ

【化236】

一般式(48)：



一般式(49)：

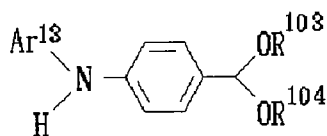


(但し、前記一般式(48)及び(49)において、Ar¹¹、Ar¹²、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は前記したものと同一であり、Xはハロゲン原子である。)、

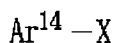
前記一般式(45)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(49')で表されるアセタール化合物と下記一般式(50)で表されるアリール化合物とをカップリングさせ

【化237】

一般式(49')：



一般式(50)：

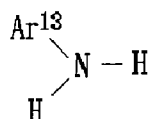


(但し、前記一般式(49')及び(50)において、Ar¹³、Ar¹⁴、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は前記したものと同一であり、Xはハロゲン原子である。)、

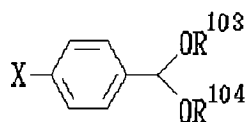
前記一般式(46)で表されるアセタール化合物を得る場合には、触媒及び塩基の存在下で、下記一般式(51)で表されるアミン化合物と下記一般式(52)で表されるアセタール化合物とをカップリングさせるのがよい。

【化 2 3 8】

一般式 (5 1) :



一般式 (5 2) :



(但し、前記一般式 (5 1) 及び (5 2) において、 Ar^{13} 、 R^{103} 及び R^{104} は前記したものと同じであり、 X はハロゲン原子である。)

【手続補正 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0086

【補正方法】変更

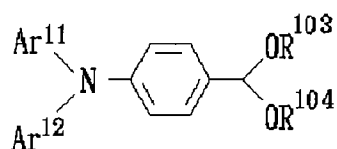
【補正の内容】

【0086】

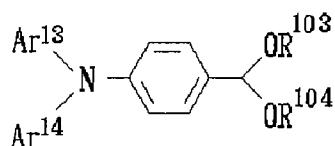
そして、この合成中間体 5、即ち、下記一般式 (4 4)、(4 5) 又は (4 6) で表されるアセタール化合物を、ケトン溶媒中、酸触媒又は塩基触媒の存在下でアセタール交換させることにより、下記一般式 (5 7)、(5 8) 又は (5 9) で表される 4- (N, N-ジアリールアミノ) ベンズアルデヒド化合物を得ることが有利である。

【化 2 4 0】

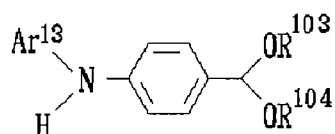
一般式 (4 4) :



一般式 (4 5) :



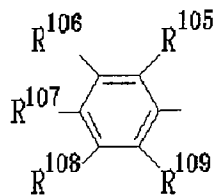
一般式 (4 6) :



[但し、前記一般式 (4 4)、(4 5) 及び (4 6) において、 Ar^{11} 、 Ar^{12} 、 Ar^{13} 及び Ar^{14} は、互いに同一の又は異なる基であって、下記一般式 (4 7) で表されるアリール基であり、

【化 2 4 1】

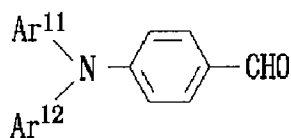
一般式 (47) :



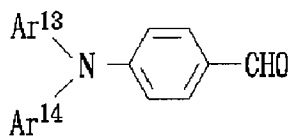
(但し、前記一般式 (47) において、R¹⁰⁵、R¹⁰⁶、R¹⁰⁷、R¹⁰⁸及びR¹⁰⁹は、互いに同一の又は異なる基であって、水素原子、炭化水素基、炭化水素オキシ基又は炭化水素アミノ基から選ばれた基である。)、R¹⁰³及びR¹⁰⁴は飽和又は不飽和の炭化水素基であり、R¹⁰³とR¹⁰⁴とが炭素鎖によってつながれた構造をとってもよい。]

【化 2 4 2】

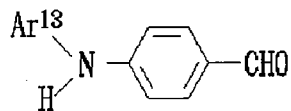
一般式 (57) :



一般式 (58) :



一般式 (59) :



(但し、前記一般式 (57)、(58) 及び (59) において、Ar¹¹、Ar¹²、Ar¹³ 及び Ar¹⁴ は前記したものと同じである。)

【手続補正 10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】図 7

【補正方法】変更

【補正の内容】

【図 7】

合成中間体としての 2, 5-ジ(ブロモメチル)テレフタロニトリル(構造式(35a))の¹H NMR スペクトル図である。

【手続補正 11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】図 14

【補正方法】変更

【補正の内容】

ה'תשנ"ח

【補正の内容】

合成中間体としての化合物（構造式（55））の¹H NMRスペクトル図である。

【補正の内容】

合成中間体としてのアセタール化合物（構造式（56））の¹H NMRスペクトル図である。

【補正の内容】

合成中間体としてのアセタール化合物（構造式（64））の¹H NMRスペクトル図である。

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-230132

(43)Date of publication of application : 22.08.2000

(51)Int.Cl. C09B 23/00

C07C211/56

C07C217/92

C07C223/06

C07C253/30

C07C255/51

C07F 9/40

C07F 9/54

C09K 11/06

H05B 33/14

(21)Application number : 11-312069 (71)Applicant : SONY CORP

(22)Date of filing : 02.11.1999 (72)Inventor : ICHIMURA MARI

TAMURA SHINICHIRO

ISHIBASHI TADASHI

TAKADA KAZUNORI

(30)Priority

Priority number : 10347561

Priority date : 07.12.1998

Priority country : JP

(54) BIS(AMINOSTYRYL)BENZENE COMPOUND AND ITS SYNTHETIC

INTERMEDIATE AND METHOD FOR THEIR PRODUCTION

®

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject new compound useful as an organic luminescent material exhibiting strong luminescence and ranging especially from yellow to red.

SOLUTION: This compound is represented by formula I (R2 and R3 are each an aryl; R1 and R4 are each formula II; one or more of R9, R10, R11, R12 and R13 are a ≥ 2 C oxyhydrocarbon group, or the like; one or more of R5, R6, R7 and R8 are H, cyano, or the like), preferably a compound of formula III. The compound of formula I, or the like, is obtained by condensation reaction of one or more of compounds of formula IV (R71 and R72 are each an aryl group corresponding to R1 group, R2 group, or the like), or the like {e.g. 4-[N-phenyl-N-(4-ethoxyphenyl)amino]benzaldehyde} with a compound of formula V (R75 and R76 are each a hydrocarbon group; R77, R78, R79 and R80 are each a group corresponding to the groups from R5 to R8, or the like). The condensation reaction is performed by the Wittig-Horner reaction and the compound of formula V, or the like, is condensed with the compound of formula IV, or the like, after the compound of formula V, or the like, is basified in a solvent. The compound of formula V, or the like, is obtained by reacting

2,5-di(bromomethyl)- terephthalonitrile, or the like, with triethyl phosphite, or the like.

LEGAL STATUS [Date of request for examination] 28.03.2006

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Drawings are not displayable due to the volume of the data (more than 200 drawings).

*** NOTICES ***

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] Bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula [I], [II], [III], or [IV].

[Formula 1]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following general formula (1), and is [Formula 2].

(However, in said general formula (1), R9, and R10, R11, R12 and R13 are radicals which are identitas mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R5, R6, and R7 And R8 mutual --

identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 3]

It is a radical which R14, R15, R16, and R17 are identities mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 4].

(However, in said general formula (2), R22, R23, R24, R25, and R26 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R18, R19, R20, and R21 -- mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 5]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R27, R28, R29, and R30 are [Formula 6].

In (said general formula (3 [however,]), R35, R36, R37, R38, and R39 are radicals which are identities mutually or are different, and those at least one is the hydrocarbon amino group of saturation or partial saturation.), and R31, R32, R33 and R34 are radicals which are identities mutually or are different, and those

at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 7]

It is a radical which R41 and R42 are identities mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 8].

In (said general formula (4 [however,]), R48, R49, R50, R51, and R52 are radicals which are identities mutually or are different, and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group.), and R40 and R43 are radicals which are identities mutually or are different, are an aryl group expressed with the following general formula (5), and are [Formula 9].

(However, in said general formula (5), R53, R54, R55, R56, R57, R58, and R59 are radicals which are identities mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R44, R45, R46, and R47 -- mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Claim 2] Bis(amino styryl) benzenoid which is expressed with the following general formula and which was indicated to claim 1.

[Formula 10]

[-- however, in said general formula, Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (6), (7), (8), and (9).

[Formula 11]

said general formula (6), (7), (8), and (9) -- setting -- R60 -- the hydrocarbon group (or) of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation [however,] Ar1, Ar2, and Ar3 And Ar4 When all are the aryl groups of a general formula (6) R60 is the hydrocarbon group of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and R61 and R62 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R63 and R64 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, respectively, n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[Claim 3] Bis(amino styryl) benzenoid said whose carbon numbers of R61, R62, R63, and R64 said carbon numbers of R60 are 2-6, and are 1-6 and which was indicated to claim 2.

[Claim 4] Bis(amino styryl) benzenoid indicated to the following general formula

(10), (11), (12), (13), (14), (15), or (15') claim 2 expressed.

[Formula 12]

(However, in said general formula (10), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 13]

(However, in said general formula (11), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 14]

(However, in said general formula (12), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 15]

(However, in said general formula (13), R68 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 16]

(However, in said general formula (14), R69 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 17]

(However, in said general formula (15), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 18]

(However, in said general formula (15'), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 5] following structure-expression (16)-1 and (16) -2, (16)-3, (16)-4, and (16) -5, (16)-6, (16)-7, and (16) -8, (16)-9, (16)-10, and (16) -- the bis(amino styryl) benzenoid which is expressed with -11, (16)-12, or (16)-13 which be indicated to claim 2.

[Formula 19]

[Claim 6] Bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula [XIX].

[Formula 20]

It is a radical which R90, R91, R92, and R93 are identities mutually in [however, said general formula [XIX], or is different, and those at least one is the aryl group expressed with the following general formula (40), the remainder is a non-permuted aryl group, and it is [Formula 21].

however, said general formula (40) -- setting -- R98, R99, and R100 -- R101 R102 [and] -- mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R94, R95, R96, and R97 -- mutual -- identities -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a

fluorine atom.]

[Claim 7] Bis(amino styryl) benzenoid which is expressed with the following general formula [XX] and which was indicated to claim 6.

[Formula 22]

In [however, said general formula [XX], R90, R91, R92, and R93 are the same as the above mentioned thing.]

[Claim 8] Said R90, R91, R92, and R93 are bis(amino styryl) benzenoid whose at least one is the aryl group expressed with the following general formula (41), whose remainder is a non-permuted aryl group and which was indicated to claim 7.

[Formula 23]

(However, in said general formula (41), the carbon number of R103 is the hydrocarbon group of the saturation of 1-6, or partial saturation, and n is the integer of 0-5.) .]

[Claim 9] Bis(amino styryl) benzenoid which is expressed with the following general formula (42) and which was indicated to claim 8.

[Formula 24]

(However, in said general formula (42), the carbon number of R104 is the hydrocarbon group of the saturation of 1-6, or partial saturation.)

[Claim 10] The following structure expression (40) Bis(amino styryl) benzenoid

which is shown by -1, (40)-2, (40)-3, (40)-4, (40)-5, (40)-6, or (40)-7 and which was indicated to claim 7.

[Formula 25]

[Claim 11] By carrying out condensation of the diphosphonium salt and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula [VIII] expressed with at least one sort and the; following general formula [VII] of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula [V] or [VI] The manufacture approach of bis(amino styryl) benzenoid of obtaining the bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula [I], [II], [III], or [IV].

[Formula 26]

(However, in said general formula [V] and [VI], R71 and R72 are the aryl groups equivalent to following R1, R2, R14, R15, R27, R28 and R40, or R41, respectively, and R73 and R74 are the aryl groups equivalent to following R3, R4, R16, R17, R29, R30 and R42, or R43, respectively.)

[Formula 27]

(However, it sets to said general formula [VII] and [VIII]. R75 and R76, respectively) It is a hydrocarbon group which is identitas mutually or is different. R77, R78, R79, and R80, respectively the following -- it is a radical equivalent to R5, R6, R7, R8, R18, R19, R20, R21, R31, R32, R33, R34, R44, R45 and R46,

or R47, and X is a halogen atom.

[Formula 28]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following general formula (1), and is [Formula 29].

(However, in said general formula (1), R9, and R10, R11, R12 and R13 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R5, R6, and R7 And R8 mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 30]

It is a radical which R14, R15, R16, and R17 are identities mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 31].

(However, in said general formula (2), R22, R23, R24, R25, and R26 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R18, R19, R20, and R21 -- mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a

halogen atom.]

[Formula 32]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R27, R28, R29, and R30 are [Formula 33].

In (said general formula (3 [however,]), R35, R36, R37, R38, and R39 are radicals which are identities mutually or are different, and those at least one is the hydrocarbon amino group of saturation or partial saturation.), and R31, R32, R33 and R34 are radicals which are identities mutually or are different, and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 34]

It is a radical which R41 and R42 are identities mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 35].

In (said general formula (4 [however,]), R48, R49, R50, R51, and R52 are radicals which are identities mutually or are different, and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group.), and R40 and R43 are radicals which are identities mutually or are different, are an aryl group expressed with the following

general formula (5), and are [Formula 36].

(However, in said general formula (5), R53, R54, R55, R56, R57, R58, and R59 are radicals which are identical mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R44, R45, R46, and R47 -- mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Claim 12] They are the Wittig-Horner (Wittig-Horner) reaction or Wittig (Wittig) about said condensation. The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 11 which performs by the reaction, is made to generate a carbanion by processing said diphosphite and/or said diphosphonium salt by the base in a solvent, and carries out condensation to this carbanion and said 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde.

[Claim 13] It faces obtaining the bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula, and is [Formula 37].

[-- however, in said general formula, Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identical -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from aryl group expressed with the following general formula (6), (7), (8), and (9).

[Formula 38]

said general formula (6), (7), (8), and (9) -- setting -- R60 -- the hydrocarbon group (or) of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation [however,] Ar1, Ar2, and Ar3 And Ar4 When all are the aryl groups of a general formula (6) R60 is the hydrocarbon group of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and R61 and R62 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R63 and R64 are the hydrocarbon groups of with identical or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4. Carry out condensation of the diphosphonium salt and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula (20) expressed with at least one sort and the; following general formula (19) of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with], the following general formula (17), or (18). The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 11.

[Formula 39]

(However, in said general formula (17), (18), (19), and (20), Ar1, Ar2, Ar3, Ar4, and R75, R76 and X are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 14] The manufacture approach of bis(amino styryl) benzenoid which makes said R75 and R76 the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 11.

[Claim 15] The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 13 which sets said carbon number of R60 to 2-6, and sets said carbon number of R61, R62, R63, and R64 to 1-6.

[Claim 16] The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 11 of obtaining the following general formula (10), (11), (12), (13), (14), (15), or (15') the bis(amino styryl) benzenoid expressed.

[Formula 40]

(However, in said general formula (10), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 41]

(However, in said general formula (11), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 42]

(However, in said general formula (12), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 43]

(However, in said general formula (13), R68 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 44]

(However, in said general formula (14), R69 is the hydrocarbon group of the

saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 45]

(However, in said general formula (15), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 46]

(However, in said general formula (15'), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 17] The following structure expression (16) -1 and (16) -2, (16)-3, (16)-4, and (16) -5, (16)-6, (16)-7, and (16) -8, (16)-9, (16)-10, and (16) -- the bis(amino styryl) benzenoid expressed with -11, (16)-12, or (16)-13 The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 11 to acquire.

[Formula 47]

[Claim 18] It faces obtaining the bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula [XIX], and is [Formula 48].

It is a radical which R90, R91, R92, and R93 are identities mutually in [however, said general formula [XIX], or is different, and those at least one is the aryl group expressed with the following general formula (40), the remainder is a non-permuted aryl group, and it is [Formula 49].

however, said general formula (40) -- setting -- R98, R99, and R100 -- R101 R102 [and] -- mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least

one is the hydrocarbon oxy-radical of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R94, R95, R96, and R97 -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a fluorine atom.] the following -- a general formula -- [-- V -- ' --] -- or -- [-- VI -- ' --] -- expressing -- having -- four - (N and N-diaryl amino) -- a benzaldehyde -- at least -- a kind --; -- the following -- a general formula -- [-- VII -- ' --] -- expressing -- having -- diphosphite -- or -- the following -- a general formula -- [-- VIII -- ' --] -- expressing -- having -- diphosphonium -- a salt --; -- condensation -- carrying out -- making -- a screw (amino styryl) -- benzenoid -- manufacture -- an approach .

[Formula 50]

(However, in said general formula [V'] and [VI'], R71' and R72' are the aryl groups equivalent to said R90 or R91, respectively, and R73' and R74' are the aryl groups equivalent to said R92 or R93, respectively.)

[Formula 51]

(however -- said -- a general formula -- [-- VII -- ' --] -- and -- [-- VIII -- ' --] -- setting -- R -- 75 -- ' -- and -- R -- 76 -- ' -- respectively -- mutual -- identitas -- or -- differing -- a hydrocarbon group -- it is -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- said -- R -- 94 -- R -- 95 -- R -- 96 -- or -- R -- 97

-- corresponding -- a radical -- it is -- X -- a halogen -- an atom -- it is .)

[Claim 19] The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 18 of obtaining the bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula [XX].

[Formula 52]

In [however, said general formula [XX], R90, R91, R92, and R93 are the same as the above mentioned thing.]

[Claim 20] The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 19 which makes said R90, R91, R92, and R93 the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (41), and makes the remainder a non-permuted aryl group.

[Formula 53]

(However, in said general formula (41), the carbon number of R103 is the hydrocarbon group of the saturation of 1-6, or partial saturation, and n is the integer of 0-5.) .]

[Claim 21] The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 21 of obtaining the bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula (42).

[Formula 54]

(However, in said general formula (42), the carbon number of R104 is the

hydrocarbon group of the saturation of 1-6, or partial saturation.)

[Claim 22] The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 18 which performs said condensation by the Wittig-Horner (Wittig-Horner) reaction or the Wittig (Wittig) reaction, is made to generate a carbanion by processing said diphosphite and/or said diphosphonium salt by the base in a solvent, and carries out condensation to this carbanion and said 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde.

[Claim 23] The following structure expression (40) The manufacture approach of the bis(amino styryl) benzenoid indicated to claim 19 of obtaining the bis(amino styryl) benzenoid shown by -1, (40)-2, (40)-3, (40)-4, (40)-5, (40)-6, or (40)-7.

[Formula 55]

[Claim 24] 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde used as a synthetic intermediate product of bis(amino styryl) benzenoid which is expressed with the following general formula [V] or [VI], and is expressed with the following general formula [I], [II], [III], or [IV].

[Formula 56]

(However, in said general formula [V] and [VI], R71 and R72 are the aryl groups equivalent to following R1, R2, R14, R15, R27, R28 and R40, or R41, respectively, and R73 and R74 are the aryl groups equivalent to following R3, R4, R16, R17, R29, R30 and R42, or R43, respectively.)

[Formula 57]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following general formula (1), and is [Formula 58].

(However, in said general formula (1), R9, and R10, R11, R12 and R13 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R5, R6, and R7 And R8 mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 59]

It is a radical which R14, R15, R16, and R¹⁷ are identical mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 60].

(However, in said general formula (2), R22, R23, R24, R25, and R26 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R18, R19, R20, and R21 -- mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 61]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R27, R28, R29, and R30 are [Formula 62].

In (said general formula (3 [however,]), R35, R36, R37, R38, and R39 are radicals which are identitas mutually or are different, and those at least one is the hydrocarbon amino group of saturation or partial saturation.), and R31, R32, R33 and R34 are radicals which are identitas mutually or are different, and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 63]

It is a radical which R41 and R42 are identitas mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 64].

In (said general formula (4 [however,]), R48, R49, R50, R51, and R52 are radicals which are identitas mutually or are different, and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group.), and R40 and R43 are radicals which are identitas mutually or are different, are an aryl group expressed with the following general formula (5), and are [Formula 65].

(However, in said general formula (5), R53, R54, R55, R56, R57, R58, and R59 are radicals which are identical mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R44, R45, R46, and R47 -- mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Claim 25] 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde which is expressed with the following general formula (17) or (18) and which was indicated to claim 24.

[Formula 66]

[-- however, in said general formula (17) and (18), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identical -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (6), (7), (8), and (9).

[Formula 67]

said general formula (6), (7), (8), and (9) -- setting -- R60 -- the hydrocarbon group (or) of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation [however,] Ar1, Ar2, and Ar3 And Ar4 When all are the aryl groups of a general formula (6) R60 is the hydrocarbon group of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and R61 and R62 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or

partial saturation. R63 and R64 are the hydrocarbon groups of with identities or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[Claim 26] 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde said whose carbon numbers of R61, R62, R63, and R64 said carbon numbers of R60 are 2-6, and are 1-6 and which was indicated to claim 25.

[Claim 27] 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde indicated to the following general formula (21), (22), (23), (24), (25), (26), or (26') claim 25 expressed.

[Formula 68]

(However, in said general formula (21), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 69]

(However, in said general formula (22), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 70]

(However, in said general formula (23), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 71]

(However, in said general formula (24), R68 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 72]

(However, in said general formula (25), R69 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 73]

(However, in said general formula (26), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 74]

(However, in said general formula (26'), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 28] The following structure expression (27) -1, (27)-2, (27)-3, (27)-4, (27)-5, (27)-6, (27)-7, (27)-8, (27)-9, (27)-10, (27)-11, (27)-12, (27)-13, (27)-14 Or 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde which is expressed with (27)-15 and which was indicated to claim 25.

[Formula 75]

[Claim 29] 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde used as a synthetic intermediate product of the bis(amino styryl) benzenoid which is expressed with the following general formula [V'] or [VI'], and is shown by the following general formula [XIX].

[Formula 76]

It is a radical which R90, R91, R92, and R93 are identities mutually in

[however, said general formula [XIX], or is different, and those at least one is the aryl group expressed with the following general formula (40), the remainder is a non-permuted aryl group, and it is [Formula 77].

however, said general formula (40) -- setting -- R98, R99, and R100 -- R101 R102 [and] -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R94, R95, R96, and R97 -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a fluorine atom.] [Formula 78]

(However, in said general formula [V'] and [VI'], R71' and R72' are said R90 or an aryl group equivalent to R91, respectively, and R73' and R74' are the aryl groups equivalent to said R92 or R93, respectively.)

[Claim 30] Said R90, R91, R92, and R93 are a 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde whose at least one is the aryl group expressed with the following general formula (41), whose remainder is a non-permuted aryl group and which was indicated to claim 29.

[Formula 79]

(However, in said general formula (41), the carbon number of R103 is the hydrocarbon group of the saturation of 1-4, or partial saturation, and n is the

integer of 0-5.) .]

[Claim 31] 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde which is expressed with the following general formula (43) and which was indicated to claim 29.

[Formula 80]

(However, in said general formula (43), the carbon number of R₁₀₄ is the hydrocarbon group of the saturation of 1-4, or partial saturation.)

[Claim 32] The following structure expression (41) 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde which is expressed with -1, (41)-2, (41)-3, (41)-4, (41)-5, (41)-6, or (41)-7 and which was indicated to claim 29.

[Formula 81]

[Claim 33] the following -- a general formula -- [-- IX --] -- or -- [-- X --] -- or -- the following -- a general formula -- [-- IX -- ' --] -- or -- [-- X -- ' --] -- expressing -- having -- a thoria -- a reel -- an amine -- the adduct of dimethylformamide and phosphorus oxychloride -- formylating -- this -- It is used as synthetic intermediate field of the bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula [I], [II], [III], [IV], or the following general formula [XIX]. And the following general formula [V] or [VI], Or the manufacture approach of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde of obtaining 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula [V'] or [VI'].

[Formula 82]

however -- said -- a general formula -- [-- IX --] -- and -- [-- X --] -- [-- IX -- ' --]
 -- and -- [-- X -- ' --] -- [-- V --] -- and -- [-- VI --] -- [-- V -- ' --] -- and -- [-- VI --
 ' --] -- setting -- R71 and R72 are the aryl groups equivalent to following R1, R2,
 R14, R15, R27, R28 and R40, or R41, respectively. R71' and R72' are the aryl
 groups equivalent to following R90 or R91, respectively. R73 and R74 --
 respectively -- the following -- it is an aryl group equivalent to R3, R4, R16, R17,
 R29, R30 and R42, or R43, and R73' and R74' are the aryl groups equivalent to
 following R92 or R93, respectively.

[Formula 83]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are
 non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following
 general formula (1), and is [Formula 84].

(However, in said general formula (1), R9, and R10, R11, R12 and R13 are
 radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the
 hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of two or more saturation or
 partial saturation, or a hydrocarbon group. R5, R6, and R7 And R8 mutual --
 identities -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a
 cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 85]

It is a radical which R14, R15, R16, and R17 are identities mutually in

[however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 86].

(However, in said general formula (2), R22, R23, R24, R25, and R26 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R18, R19, R20, and R21 -- mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 87]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R27, R28, R29, and R30 are [Formula 88].

In (said general formula (3) [however,]), R35, R36, R37, R38, and R39 are radicals which are identical mutually or are different, and those at least one is the hydrocarbon amino group of saturation or partial saturation.), and R31, R32, R33 and R34 are radicals which are identical mutually or are different, and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 89]

It is a radical which R41 and R42 are identical mutually in [however, said

general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 90].

In (said general formula (4) [however,]), R48, R49, R50, R51, and R52 are radicals which are identical mutually or are different, and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group.), and R40 and R43 are radicals which are identical mutually or are different, are an aryl group expressed with the following general formula (5), and are [Formula 91].

(However, in said general formula (5), R53, R54, R55, R56, R57, R58, and R59 are radicals which are identical mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R44, R45, R46, and R47 -- mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 92]

It is a radical which R90, R91, R92, and R93 are identical mutually in [however, said general formula [XIX], or is different, and those at least one is the aryl group expressed with the following general formula (40), the remainder is a non-permuted aryl group, and it is [Formula 93].

however, said general formula (40) -- setting -- R98, R99, and R100 -- R101

R102 [and] -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group.

R94, R95, R96, and R97 -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a fluorine atom.]

[Claim 34] The manufacture approach of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde indicated to claim 33 of obtaining 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula (17) or (18).

[Formula 94]

[-- however, in said general formula (17) and (18), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (6), (7), (8), and (9).

[Formula 95]

said general formula (6), (7), (8), and (9) -- setting -- R60 -- the hydrocarbon group (or) of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation [however,] Ar1, Ar2, and Ar3 And Ar4 When all are the aryl groups of a general formula (6) R60 is the hydrocarbon group of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and R61 and R62 are the

hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R63 and R64 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[Claim 35] The manufacture approach of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde indicated to claim 34 which sets said carbon number of R60 to 2-6, and sets said carbon number of R61, R62, R63, and R64 to 1-6.

[Claim 36] The manufacture approach of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde indicated to claim 34 of obtaining the following general formula (21), (22), (23), (24), (25), (26), or (26') 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed.

[Formula 96]

(However, in said general formula (21), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 97]

(However, in said general formula (22), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 98]

(However, in said general formula (23), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 99]

(However, in said general formula (24), R68 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 100]

(However, in said general formula (25), R69 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 101]

(However, in said general formula (26), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 102]

(However, in said general formula (26'), R70 is the saturation or the unsaturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-6.)

[Claim 37] The following structure expression (27) -1, (27)-2, (27)-3, (27)-4, (27)-5, (27)-6, (27)-7, (27)-8, (27)-9, (27)-10, (27)-11, (27)-12, (27)-13, (27)-14

Or the manufacture approach of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde indicated to claim 34 of obtaining 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with (27)-15.

[Formula 103]

[Claim 38] The acetal compound expressed with the following general formula (44), (45), or (46).

[Formula 104]

[-- said general formula (44), (45), and (46) -- setting -- Ar11, Ar12, Ar13, and Ar14 -- mutual -- identitas -- or the aryl group which is a different radical and is expressed with the following general formula (47) -- it is -- [Formula 105]
[however,]

(However, it sets to said general formula (47). R105, R106, R107, R108, and R109) mutual -- identitas -- or it is a different radical and is the radical chosen from a hydrogen atom, a hydrocarbon group, a hydrocarbon oxy-radical, or the hydrocarbon amino group. R103 And R104 the hydrocarbon group of saturation or partial saturation -- it is -- R103 R104 It is very good in the structure connected by the chain.]

[Claim 39] It faces obtaining the acetal compound expressed with the following general formula (44), (45), or (46), and is [Formula 106].

[-- said general formula (44) and (45) -- setting -- Ar11, Ar12, Ar13, and Ar14 -- mutual -- identitas -- or the aryl group which is a different radical and is expressed with the following general formula (47) -- it is -- [Formula 107]
[however,]

(However, it sets to said general formula (47). R105, R106, R107, R108, and R109) mutual -- identitas -- or it is a different radical and is the radical chosen from a hydrogen atom, a hydrocarbon group, a hydrocarbon oxy-radical, or the hydrocarbon amino group. R103 And R104 the hydrocarbon group of saturation

or partial saturation -- it is -- R103 R104 It is very good in the structure connected by the chain.] Coupling of the acetal compound expressed with the amine compound expressed with the following general formula (48) under existence of a catalyst and a base and the following general formula (49) when obtaining the acetal compound expressed with said general formula (44) is carried out, and it is [Formula 108].

In (said general formula (48 [however,]) and (49), Ar11, Ar12, R103, and R104 are the same as the above mentioned thing, and X is a halogen atom. Coupling of the aryl compound expressed with the acetal compound expressed with the following general formula (49') under existence of a catalyst and a base and the following general formula (50) when obtaining the acetal compound expressed with) and said general formula (45) is carried out, and it is [Formula 109].

(However, in said general formula (49') and (50), Ar13, Ar14, R103, and R104 are the same as the above mentioned thing.) X is a halogen atom. The manufacture approach of the acetal compound to which it carries out coupling of the acetal compound expressed with the amine compound expressed with the following general formula (51), and the following general formula (52) under existence of a catalyst and a base in obtaining the acetal compound expressed with said general formula (46).

[Formula 110]

(However, in said general formula (51) and (52), Ar13, R103, and R104 are the same as the above mentioned thing, and X is a halogen atom.)

[Claim 40] The manufacture approach of the acetal compound indicated as said catalyst used at the time of said coupling to claim 39 which the following Pd(O)-phosphine complex commits as active species.

a Pd(O)-phosphine complex -- {-- however, Pd (O) may be added as a reagent of Pd (O), Pd (I), and Pd (II), and a phosphine is the 3rd class phosphine expressed with the following general formula (53) or (54).

[Formula 111]

[-- however, in said general formula (53) and (54), R105 and R106 are the hydrocarbon groups of saturation or partial saturation, and Q is very good in the bridged structure which is expressed with a hydrocarbon group, the following general formula (55), or (56).

General formula (55):- $(CH_2)_n-G-(CH_2)_n$ -general formula (56) :-Ar15-G-Ar16-(however, in said general formula (55) and (56), G is oxygen atom, sulfur atom, amino-group, hydrocarbon-group, or metal atom, and Ar15 and Ar16 are aryl groups which may have substituent.))}

[Claim 41] The manufacture approach of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde compound of obtaining 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde compound expressed with the following general formula (57), (58), or (59) by carrying out

acetal exchange of the acetal compound expressed with the following general formula (44), (45), or (46) under existence of an acid catalyst or a base catalyst among a ketone solvent.

[Formula 112]

[-- said general formula (44) and (45) -- setting -- Ar11, Ar12, Ar13, and Ar14 -- mutual -- identitas -- or the aryl group which is a different radical and is expressed with the following general formula (47) -- it is -- [Formula 113]
[however,]

(However, it sets to said general formula (47). R105, R106, R107, R108, and R109) mutual -- identitas -- or it is a different radical and is the radical chosen from a hydrogen atom, a hydrocarbon group, a hydrocarbon oxy-radical, or the hydrocarbon amino group. R103 And R104 the hydrocarbon group of saturation or partial saturation -- it is -- R103 R104 It is very good in the structure connected by the chain.]

[Formula 114]

(However, in said general formula (57), (58), and (59), Ar11, Ar12, Ar13, and Ar14 are the same as the above mentioned thing.)

[Claim 42] The following structure expression (27) -1, (27)-2, (27)-3, (27)-4, (27)-5, (27)-6, (27)-7, (27)-8, (27)-9, (27)-10, (27)-11, (27)-12, (27)-13, (27)-14
Or the manufacture approach of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde

indicated to claim 41 of obtaining 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with (27)-15.

[Formula 115]

[Claim 43] the following -- a general formula -- [-- IX --] -- or -- [-- X --] -- or -- the following -- a general formula -- [-- IX -- ' --] -- or -- [-- X -- ' --] -- expressing -- having -- the following -- a general formula -- [-- I --] -- [-- II --] -- [-- III --] -- or -- [-- IV --] -- or -- the following -- a general formula -- [-- XIX --] -- expressing -- having -- a screw (amino styryl) -- benzenoid -- composition -- intermediate field -- ***** -- using -- having -- a thoria -- a reel -- an amine -- .

[Formula 116]

however -- said -- a general formula -- [-- IX --] -- and -- [-- X --] -- [-- IX -- ' --] -- and -- [-- X -- ' --] -- setting -- R71 and R72 are the aryl groups equivalent to following R1, R2, R14, R15, R27, R28 and R40, or R41, respectively. R71' and R72' are the aryl groups equivalent to following R90 or R91, respectively. R73 and R74 -- respectively -- the following -- it is an aryl group equivalent to R3, R4, R16, R17, R29, R30 and R42, or R43, and R73' and R74' are the aryl groups equivalent to following R92 or R93, respectively.

[Formula 117]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following

general formula (1), and is [Formula 118].

(However, in said general formula (1), R9, and R10, R11, R12 and R13 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R5, R6, and R7 And R8 mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 119]

It is a radical which R14, R15, R16, and R17 are identical mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 120].

(However, in said general formula (2), R22, R23, R24, R25, and R26 are radicals which are identical mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R18, R19, R20, and R21 -- mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 121]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a

non-permuted aryl group, and R27, R28, R29, and R30 are [Formula 122].

In (said general formula (3 [however,]), R35, R36, R37, R38, and R39 are radicals which are identitas mutually or are different, and those at least one is the hydrocarbon amino group of saturation or partial saturation.), and R31, R32, R33 and R34 are radicals which are identitas mutually or are different, and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 123]

It is a radical which R41 and R42 are identitases mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 124].

In (said general formula (4 [however,]), R48, R49, R50, R51, and R52 are radicals which are identitas mutually or are different, and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group.), and R40 and R43 are radicals which are identitas mutually or are different, are an aryl group expressed with the following general formula (5), and are [Formula 125].

(However, in said general formula (5), R53, R54, R55, R56, R57, R58, and R59 are radicals which are identitas mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial

saturation, or a hydrocarbon group. R44, R45, R46, and R47 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 126]

It is a radical which R90, R91, R92, and R93 are identities mutually in [however, said general formula [XIX], or is different, and those at least one is the aryl group expressed with the following general formula (40), the remainder is a non-permuted aryl group, and it is [Formula 127].

however, said general formula (40) -- setting -- R98, R99, and R100 -- R101 R102 [and] -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R94, R95, R96, and R97 -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a fluorine atom.]

[Claim 44] The thoria reel amine which is expressed with the following general formula (28) or (29) and which was indicated to claim 43.

[Formula 128]

[-- however, in said general formula (28) and (29), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl

group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (6), (7), (8), and (9).

[Formula 129]

said general formula (6), (7), (8), and (9) -- setting -- R60 -- the hydrocarbon group (or) of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation [however,] Ar1, Ar2, and Ar3 And Ar4 When all are the aryl groups of a general formula (6) R60 is the hydrocarbon group of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and R61 and R62 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R63 and R64 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[Claim 45] The thoria reel amine said whose carbon numbers of R61, R62, R63, and R64 said carbon numbers of R60 are 2-4, and are 1-4 and which was indicated to claim 44.

[Claim 46] The thoria reel amine which is expressed with the following general formula (30), (31), (32), (33), (34), or (35) and which was indicated to claim 44.

[Formula 130]

(However, in said general formula (30), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 131]

(However, in said general formula (31), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 132]

(However, in said general formula (32), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 133]

(However, in said general formula (33), R68 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 134]

(However, in said general formula (34), R69 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 135]

(However, in said general formula (35), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 47] The following structure expression (36) Thoria reel amine which is expressed with -1, (36)-2, (36)-3, (36)-4, (36)-5, (36)-6, (36)-7, (36)-8, (36)-9, (36)-10, or (36)-11 and which was indicated to claim 44.

[Formula 136]

[Claim 48] the following -- a general formula -- [-- IX --] -- or -- [-- X --] -- or --

the following -- a general formula -- [-- IX -- ' --] -- or -- [-- X -- ' --] -- expressing -- having -- It faces manufacturing the thoria reel amine used as synthetic intermediate field of the bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula [I], [II], [III], [IV], or the following general formula [XIX]. [whether coupling of the halogenation benzene expressed with the diarylamine and the following general formula [XII] which are expressed with the following general formula [XI] or [XI'], or [XII'] is carried out under existence of a catalyst and a base, and] Or the manufacture approach of the thoria reel amine to which coupling of the aryl halide compound expressed with the diarylamine and the following general formula [XIV] which are expressed with the following general formula [XIII] or [XIII'], or [XIV'] is carried out under existence of a catalyst and a base.

[Formula 137]

however -- said -- a general formula -- [-- IX --] -- and -- [-- X --] -- [-- IX -- ' --] -- and -- [-- X -- ' --] -- [-- XI --] -- and -- [-- XII --] -- [-- XI -- ' --] -- and -- [-- XII -- ' --] -- [-- XIII --] -- and -- [-- XIV --] -- [-- XIII -- ' --] -- and -- [-- XIV -- ' --] -- setting -- R71 and R72 are the aryl groups equivalent to following R1, R2, R14, R15, R27, R28 and R40, or R41, respectively. R71' and R72' are the aryl groups equivalent to following R90 or R91, respectively. R73 and R74 -- respectively -- the following -- it is an aryl group equivalent to R3, R4, R16, R17, R29, R30 and

R42, or R43, R73' and R74' are the aryl groups equivalent to following R92 or R93, respectively, and X is a halogen atom.

[Formula 138]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following general formula (1), and is [Formula 139].

(However, in said general formula (1), R9, and R10, R11, R12 and R13 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R5, R6, and R7 And R8 mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 140]

It is a radical which R14, R15, R16, and R17 are identities mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 141].

(However, in said general formula (2), R22, R23, R24, R25, and R26 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R18, R19, R20, and R21 -- mutual -- identities -- or it is a different radical

and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 142]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R27, R28, R29, and R30 are [Formula 143].

In (said general formula (3 [however,]), R35, R36, R37, R38, and R39 are radicals which are identitas mutually or are different, and those at least one is the hydrocarbon amino group of saturation or partial saturation.), and R31, R32, R33 and R34 are radicals which are identitas mutually or are different, and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 144]

It is a radical which R41 and R42 are identitases mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 145].

In (said general formula (4 [however,]), R48, R49, R50, R51, and R52 are radicals which are identitas mutually or are different, and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group.), and R40 and R43 are radicals which are

identitas mutually or are different, are an aryl group expressed with the following general formula (5), and are [Formula 146].

(However, in said general formula (5), R53, R54, R55, R56, R57, R58, and R59 are radicals which are identitas mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R44, R45, R46, and R47 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 147]

It is a radical which R90, R91, R92, and R93 are identitas mutually in [however, said general formula [XIX], or is different, and those at least one is the aryl group expressed with the following general formula (40), the remainder is a non-permuted aryl group, and it is [Formula 148].

however, said general formula (40) -- setting -- R98, R99, and R100 -- R101 R102 [and] -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R94, R95, R96, and R97 -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a fluorine atom.]

[Claim 49] The manufacture approach of the thoria reel amine indicated to claim 48 of obtaining the thoria reel amine expressed with the following general formula (28) or (29).

[Formula 149]

[-- however, in said general formula (28) and (29), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (6), (7), (8), and (9).

[Formula 150]

said general formula (6), (7), (8), and (9) -- setting -- R60 -- the hydrocarbon group (or) of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation [however,] Ar1, Ar2, and Ar3 And Ar4 When all are the aryl groups of a general formula (6) R60 is the hydrocarbon group of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, and R61 and R62 are the hydrocarbon groups of with a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation. R63 and R64 are the hydrocarbon groups of with identitas or a different carbon numbers of one or more saturation or partial saturation mutually, n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[Claim 50] The manufacture approach of the thoria reel amine indicated to claim 49 which sets said carbon number of R60 to 2-6, and sets said carbon number of

R61, R62, R63, and R64 to 1-6.

[Claim 51] The manufacture approach of the thoria reel amine indicated to claim 49 of obtaining the thoria reel amine expressed with the following general formula (30), (31), (32), (33), (34), or (35).

[Formula 151]

(However, in said general formula (30), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 152]

(However, in said general formula (31), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 153]

(However, in said general formula (32), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 154]

(However, in said general formula (33), R68 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 155]

(However, in said general formula (34), R69 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 156]

(However, in said general formula (35), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Claim 52] following structure-expression (36)-1, (36)-2, and (36) -3, (36)-4, (36)-5, and (36) -6, (36)-7, (36)-8, and (36) -- the manufacture approach of the thoria reel amine indicated to claim 49 of obtaining the thoria reel amine expressed with -9, (36)-10, or (36)-11.

[Formula 157]

[Claim 53] the following -- a general formula -- [-- VII --] -- or -- [-- VIII --] -- or -- [-- VII -- ' --] -- or -- [-- VIII -- ' --] -- expressing -- having -- diphosphite -- or -- diphosponium -- a salt .

[Formula 158]

however -- said -- a general formula -- [-- VII --] -- and -- [-- VIII --] -- or -- [-- VII -- ' --] -- and -- [-- VIII -- ' --] -- setting -- R75 and R76 or R75', and R76' are hydrocarbon groups which are identitas mutually or are different, respectively. R77, R78, R79, and R80 are radicals which are identitas or are different, respectively. Those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom. R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, those at least one is a fluorine atom, and X is a halogen atom.

[Claim 54] The diphosphite or the diphosphonium salt said R75 and R76, R75', and whose R76' are the saturated hydrocarbon radicals of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 53.

[Claim 55] the following general formula (19) or (20) -- or (19') -- or (20') the diphosphite which is expressed and which was indicated to claim 53 or a diphosphonium salt.

[Formula 159]

(However, it sets and R75, R76, R75', R76', and X are the same as said general formula (19), (20), and (19') (20') the above mentioned thing.)

[Claim 56] the following -- a general formula -- [-- XV --] -- or -- [-- XV -- ' --] -- expressing -- having -- aryl halide -- a compound -- the following -- a general formula -- [-- XVI --] -- expressing -- having -- phosphorous acid -- trialkyl -- or -- triphenyl phosphine (PPh₃) -- reacting -- making -- things -- the following -- a general formula -- [-- VII --] -- or -- [-- VIII --] -- or -- [-- VII -- ' --] -- or -- [-- VIII -- ' --] -- expressing -- having -- diphosphite -- or -- diphosphonium -- a salt -- obtaining -- diphosphite -- or -- diphosphonium -- a salt -- manufacture -- an approach .

[Formula 160]

(However, it sets to said general formula [XV] and [XV']. R77, R78, R79, and R80, respectively) It is a radical which is identitas or is different. Those at least

one A hydrogen atom, a cyano group -- a nitro group -- or -- a halogen -- an atom -- it is -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, those at least one is a fluorine atom, and X is a halogen atom.

general formula [XVI] :P. (OR81) 3 or -- P 3 (OR82) (however, said general formula [XVI] -- setting -- R81 and R82 -- respectively -- identitas -- or it is a different hydrocarbon group.)

[Formula 161]

(however -- said -- a general formula -- [-- VII --] -- and -- [-- VIII --] -- [-- VII -- ' --] -- and -- [-- VIII -- ' --] -- setting -- R -- 75 -- and -- R -- 76 -- or -- R -- 75 -- ' -- and -- R -- 76 -- ' -- respectively -- mutual -- identitas -- or -- differing -- a hydrocarbon group -- it is -- R -- 77 -- R -- 78 -- R -- 79 -- R -- 80 -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- R -- 80 -- ' -- and -- X -- said -- having carried out -- a thing -- being the same .)

[Claim 57] Said R75 and R76, R75', and R76' are the manufacture approach of the diphosphite which is made into the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 and which was indicated to claim 56, or a diphosphonium salt.

[Claim 58] the following general formula (19) or (20) -- or (19') -- or (20') the manufacture approach of the diphosphite which obtains the diphosphite

expressed or a diphosphonium salt and which was indicated to claim 56, or a diphosphonium salt.

[Formula 162]

[Claim 59] The aryl halide compound expressed with the following general formula [XV] or [XV'].

[Formula 163]

(However, it sets to said general formula [XV] and [XV']. R77, R78, R79, and R80, respectively) It is a radical which is identical or is different. Those at least one A hydrogen atom, a cyano group -- a nitro group -- or -- a halogen -- an atom -- it is -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- mutual -- identical -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, those at least one is a fluorine atom, and X is a halogen atom.

[Claim 60] The manufacture approach of an aryl halide compound of obtaining the aryl halide compound expressed with the following general formula [XV] or [XV'] by making the xylene compound expressed with the following general formula [XVII] or [XVII'], and N-halogenation succinimide expressed with the following general formula [XVIII] reacting to the bottom of an optical exposure.

[Formula 164]

(However, it sets to said general formula [XVII] and [XVII']. R77, R78, R79, and

R80, respectively) It is a radical which is identical or is different. Those at least one A hydrogen atom, a cyano group -- a nitro group -- or -- a halogen -- an atom -- it is -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- mutual -- identical -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a fluorine atom.

[Formula 165]

(However, in said general formula [XVIII], X is a halogen atom.)

[Formula 166]

(however -- said -- a general formula -- [-- XV --] -- and -- [-- XV -- ' --] -- setting -- R -- 77 -- R -- 78 -- R -- 79 -- and -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- said -- having carried out -- a thing -- the same -- X -- a halogen -- an atom -- it is .)

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to these manufacture approaches at bis(amino styryl) benzenoid suitable as an organic luminescent material which

presents the desired luminescent color and its synthetic intermediate field, and a list.

[0002]

[Description of the Prior Art] It is spontaneous light, and a speed of response is high-speed, as one candidate of a flat-panel display without an angle-of-visibility dependency, organic electroluminescence devices (EL element) etc. attract attention recently, and the interest about an organic luminescent material is increasing as the component. Implementation of the full color organic light emitting device which is in the place which can control the optical property of an ingredient to some extent by the molecular design, and created all of red, blue, and green three-primary-colors luminescence by each organic luminescent material by this is possible for the first advantage of an organic luminescent material.

[0003] Since the bis(amino styryl) benzenoid shown by the following general formula [A] presents strong luminescence of blue - red to a visible-region field depending on the substituent introduced, it is available not only for an organic electroluminescence-devices ingredient but various applications. Furthermore, these ingredients are sublimability and have the advantage which can form the uniform amorphous film according to processes, such as vacuum deposition. Although the optical property of an ingredient can predict until to some extent by

molecular orbital count etc. by the end of today, it cannot be overemphasized that the technique of manufacturing the ingredient demanded in fact efficient is the most important on industry.

[0004]

[Formula 167]

(However, in said general formula [A], Ar is the aryl group which may have a substituent, and Ra and Rb show the aryl group which may have the hydrocarbon group of a hydrogen atom, saturation, or partial saturation, and a substituent, a cyano group, a halogen atom, a nitro group, and an alkoxyl group, respectively, and these may be the same or may differ.)

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Although many compounds which belong to said general formula [A] as an organic luminescent material have so far been manufactured Many of the fluorescence (luminescence) of these ingredients are [that what is blue - green and presents luminescence of yellow - red is only reported slightly and]. [electrical-and-electric-equipment information American Communications Association,], such as a technical research report, organic electronics, 17 and 7 (1992), Inorganic and OrganicElectroluminescence 96 Berlin, and 101 (1996), and the efficient manufacturing method of those were not established, either.

[0006] The purpose of this invention is especially in view of the above present condition to offer [the compound suitable as an organic luminescent material of yellow - red which presents strong luminescence and its synthetic intermediate field, and] the approach of manufacturing these efficient.

[0007]

[Means for Solving the Problem] In order to solve the above-mentioned technical problem, as a result of inquiring wholeheartedly, the bis(amino styryl) benzenoid expressed with a general formula [I], [II], [III], or [IV] used to present strong luminescence, and this invention person used to find out that it can become the luminescent material of yellow - red, and used to establish the general and efficient manufacture approach, and used to reach this invention.

[0008] That is, this invention relates to the bis(amino styryl) benzenoid (the 1st compound of this invention is called hereafter.) expressed with the following general formula [I], [II], [III], or [IV] first.

[Formula 168]

In [however, said general formula [I], it is the aryl group as which R2 and R3 are non-permuted aryl groups, and R1 and R4 are expressed in the following general formula (1), and is [Formula 169].

(However, in said general formula (1), R9, and R10, R11, R12 and R13 are radicals which are identities mutually or are different.) those at least one is the

hydrocarbon oxy-radical of with a carbon numbers of two or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R5, R6, and R7 And R8 mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom (below : F, Cl, Br, I, etc. are the same).]

[Formula 170]

It is a radical which R14, R15, R16, and R17 are identitas mutually in [however, said general formula [II], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (2), and is [Formula 171].

(However, in said general formula (2), R22, R23, R24, R25, and R26 are radicals which are identitas mutually or are different.) those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R18, R19, R20, and R21 -- mutual -- identitas -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 172]

It is the aryl group as which at least one is expressed in the following general formula (3) in [however, said general formula [III], the remainder is a non-permuted aryl group, and R27, R28, R29, and R30 are [Formula 173].

In (said general formula (3 [however,]), R35, R36, R37, R38, and R39 are

radicals which are identical mutually or are different, and those at least one is the hydrocarbon amino group of saturation or partial saturation.), and R31, R32, R33 and R34 are radicals which are identical mutually or are different, and those at least one is a hydrogen atom, a cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[Formula 174]

It is a radical which R41 and R42 are identical mutually in [however, said general formula [IV], or is different, is the aryl group expressed with the following general formula (4), and is [Formula 175].

In (said general formula (4) [however,]), R48, R49, R50, R51, and R52 are radicals which are identical mutually or are different, and hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group.), and R40 and R43 are radicals which are identical mutually or are different, are an aryl group expressed with the following general formula (5), and are [Formula 176].

(However, in said general formula (5), R53, R54, R55, R56, R57, R58, and R59 are radicals which are identical mutually or are different.) hydrogen atoms or those at least one are the hydrocarbon oxy-radical of saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R44, R45, R46, and R47 -- mutual -- identical -- or it is a different radical and those at least one is a hydrogen atom, a

cyano group, a nitro group, or a halogen atom.]

[0009] It is the matter which can use the 1st compound of this invention effectively as an organic luminescent material which shows luminescence of yellow - red, and has a high glass transition point and the high melting point, and when excelled in electric, thermal, or chemical stability, it is amorphous, and since a vitreous state can be formed easily, vacuum evaporation etc. can also be performed.

[0010] As for the 1st compound of this invention, what is expressed with the following general formula is desirable.

[Formula 177]

[-- however, in said general formula, Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 may have a substituent, respectively -- mutual -- identitas -- or it is a different aryl group, and when it has a substituent, it is the radical chosen from the aryl group expressed with the following general formula (6), (7), (8), and (9).

[Formula 178]

said general formula (6), (7), (8), and (9) -- setting -- R60 -- two or more carbon numbers -- especially -- the hydrocarbon group (or) of the saturation of 2-4, or partial saturation [however,] Ar1, Ar2, and Ar3 And Ar4 When all are the aryl groups of a general formula (6) Especially R60 is the hydrocarbon group of 2 or more and 6 or less (following, the same) saturation or partial saturation one or

more carbon numbers. R61 and especially R62 are the hydrocarbon groups of the saturation of 1-6 (following, the same), or partial saturation one or more carbon numbers. R63 and especially R64 are the hydrocarbon groups of the saturation of 1-6 (following, the same), or partial saturation identities or one or more different carbon numbers mutually, respectively, n is the integer of 0-5, m is the integer of 0-3, and l is the integer of 0-4.]

[0011] More specifically, the 1st compound of this invention has the following general formula (9), (10), (11), (12), (13), (14), (15), or (15') the good thing expressed.

[Formula 179]

(However, in said general formula (10), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 180]

(However, in said general formula (11), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 181]

(However, in said general formula (12), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 182]

(However, in said general formula (13), R68 is the hydrocarbon group of the

saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 183]

(However, in said general formula (14), R69 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 184]

(However, in said general formula (15), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 185]

(However, in said general formula (15'), R70 is the saturation or the unsaturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-6.)

[0012] The 1st compound of this invention The following structure expression

(16) What is expressed with -1, (16)-2, (16)-3, (16)-4, (16)-5, (16)-6, (16)-7, (16)-8, (16)-9, (16)-10, (16)-11, (16)-12, or (16)-13 is illustrated concretely.

[Formula 186]

[0013] The following compound can also be illustrated besides these.

[Formula 187]

[0014]

[Formula 188]

[0015]

[Formula 189]

[0016]

[Formula 190]

[0017]

[Formula 191]

[0018]

[Formula 192]

[0019]

[Formula 193]

[0020]

[Formula 194]

[0021] in addition, ** called t-butyl etc. like the above-mentioned structure-expression (16)-8, (16)-9, etc. -- the following property improvements may be able to be aimed at by installation of a high substituent.

** Realize the stable amorphous film by weakening a firm intermolecular interaction.

** Detach the hopping site distance of a hole and control hole transportability.

[0022] Moreover, this invention also offers the bis(amino styryl) benzenoid (the 2nd compound of this invention is called hereafter.) shown by the following general formula [XIX].

[Formula 195]

It is a radical which R90, R91, R92, and R93 are identities mutually in [however, said general formula [XIX], or is different, and those at least one is the aryl group expressed with the following general formula (40), the remainder is a non-permuted aryl group, and it is [Formula 196].

however, said general formula (40) -- setting -- R98, R99, and R100 -- R101 R102 [and] -- mutual -- identities -- or it is a different radical and those at least one is the hydrocarbon oxy-radical of with a hydrogen atom and a carbon numbers of one or more saturation or partial saturation, or a hydrocarbon group. R94, R95, R96, and R97 -- mutual -- identities -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a fluorine atom.]

[0023] It is the matter which can use the 2nd compound of this invention effectively as an organic luminescent material which shows luminescence of green - red, and has a high glass transition point and the high melting point, and when excelled in electric, thermal, or chemical stability, it is amorphous, and since a vitreous state can be formed easily, vacuum evaporation etc. can also be performed.

[0024] As for the 2nd compound of this invention, what is shown by the following general formula [XX] is desirable.

[Formula 197]

In [however, said general formula [XX], R90, R91, R92, and R93 are the same as the above mentioned thing.]

[0025] And as for said R90, R91, R92, and R93, it is good that at least one is the aryl group expressed with the following general formula (41), and the remainder is a non-permuted aryl group.

[Formula 198]

(However, in said general formula (41), the carbon number of R103 is the hydrocarbon group of the saturation of 1-6, or partial saturation, and n is the integer of 0-5.) .]

[0026] What is especially expressed with the following general formula (42) is good.

[Formula 199]

(However, in said general formula (42), the carbon number of R104 is the hydrocarbon group of the saturation of 1-4, or partial saturation.)

[0027] That the 2nd compound of this invention is indicated to be by following structure-expression (40)-1, (40)-2, (40)-3, (40)-4, (40)-5, (40)-6, or (40)-7 is specifically illustrated.

[Formula 200]

[0028] This invention as an approach of manufacturing the 1st compound of this invention efficient again By carrying out condensation of the diphosphonium salt

and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula [VIII] expressed with at least one sort and the; following general formula [VII] of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula [V] or [VI] The manufacture approach of the compound of this invention of obtaining the bis(amino styryl) benzenoid expressed with said general formula [I], [II], [III], or [IV] (the 1st manufacture approach of this invention is called hereafter.) It provides.

[0029]

[Formula 201]

(However, in said general formula [V] and [VI], R71 and R72 are the aryl groups equivalent to said R1 and R2, R14, R15, R27, R28 and R40, or R41, respectively, and R73 and R74 are the aryl groups equivalent to said R3, R4, R16, R17, R29, R30 and R42, or R43, respectively.)

[Formula 202]

(However, it sets to said general formula [VII] and [VIII]. R75 and R76, respectively) Mutually Identitas or a different hydrocarbon group, especially the saturated hydrocarbon radical of carbon numbers 1-4 (-- the following -- the same --) -- it is -- R77, R78, R79, and R80 are the radicals equivalent to said R5, R6, R7 and R8, R18, R19, R20, R21, R31, R32, R33, R34, R44, R45 and R46, or R47, respectively, and X is a halogen atom.

[0030] Specifically, the 1st manufacture approach of this invention is the Wittig-Horner (Wittig-Horner) reaction or Wittig (Wittig) about said condensation.

A reaction performs, by processing said diphosphite and/or said diphosphonium salt by the base in a solvent, a carbanion is made to generate and condensation is carried out to this carbanion and said 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde.

[0031] For example, it faces obtaining the bis(amino styryl) benzenoid expressed with the following general formula [I'], and is [Formula 203].

In [however, said general formula [I'] Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4, respectively , it is the same as said thing carried out. Condensation of the diphosphonium salt and; which are expressed with the diphosphite or the following general formula (20) expressed with at least one sort and the; following general formula (19) of 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde expressed with the following general formula (17) or (18) is carried out.

[Formula 204]

(However, in said general formula (17), (18), (19), and (20), Ar1, Ar2, Ar3, Ar4, and R75, R76 and X are the same as the above mentioned thing.)

[0032] If a reaction scheme shows this condensation, it will become, for example like the following reaction scheme 1.

[Formula 205]

[0033] First, by processing a general formula (19) or the compound of (20) with a

base in a suitable solvent, this reaction begins from generating a carbanion, and when this carbanion next condenses with the aldehyde of a general formula (17), it is completed. The following can be considered as a combination of a base and a solvent.

[0034] A sodium hydroxide/water, a sodium carbonate/water, potassium carbonate/water, a sodium ethoxide/ethanol, or dimethylformamide, Sodium methoxide / methanol-diethylether mixed solvent, or dimethylformamide, Triethylamine / ethanol, a jig lime, chloroform, or nitromethane, A pyridine / methylene chloride or nitromethane, 1, and 5-diazabicyclo [4.3.0] Non, -5-en / dimethyl sulfoxide, Potassium t-butoxide / dimethyl sulfoxide, or a tetrahydrofuran, Butyl lithium / diethylether, a tetrahydrofuran, benzene, or dimethylformamide, A phenyl lithium / diethylether or a tetrahydrofuran, sodium amide/ammonia, sodium hydride / dimethylformamide or a tetrahydrofuran, trityl sodium / diethylether, or a tetrahydrofuran.

[0035] This reaction advances comparatively at low temperature (-30 degrees C - 30 degrees C), and in addition to purification of the specified substance by the chromatography being easy since it is alternative, since the 1st compound of this invention of a general formula [I'] has high crystallinity, it can raise purity with recrystallization. Although not asked especially about the approach of recrystallization, the approach of dissolving in an acetone and adding a hexane

is simple, and subsequent solvent distilling off is also easy the approach. Ordinary temperature -30 degree C and ordinary pressure may perform this reaction in 3 - 24 hours.

[0036] By the 1st manufacture approach of this invention, said general formula (10), (11), The bis(amino styryl) benzenoid expressed with (12), (13), (14), or (15) can be obtained. Specifically Said structure expression (16) The bis(amino styryl) benzenoid expressed with -1, (16)-2, (16)-3, (16)-4, (16)-5, (16)-6, (16)-7, (16)-8, or (16)-9 can be obtained.

[0037] This invention as an approach of manufacturing the 2nd compound of this invention efficient again the following -- a general formula -- [-- V -- ' --] -- or -- [-- VI -- ' --] -- expressing -- having -- four - (N and N-diaryl amino) -- a benzaldehyde -- at least -- one -- a sort --; -- the following -- a general formula -- [-- VII -- ' --] -- expressing -- having -- diphosphite -- or -- the following -- a general formula -- [-- VIII -- ' --] -- expressing -- having -- diphosphonium -- a salt --; -- condensation -- carrying out -- making -- The manufacture approach of bis(amino styryl) benzenoid (the 2nd manufacture approach of this invention is called hereafter.) It provides.

[Formula 206]

(However, in said general formula [V'] and [VI'], R71' and R72' are the aryl groups equivalent to said R90 or R91, respectively, and R73' and R74' are the

aryl groups equivalent to said R92 or R93, respectively.)

[Formula 207]

(however -- said -- a general formula -- [-- VII -- ' --] -- and -- [-- VIII -- ' --] -- setting -- R -- 75 -- ' -- and -- R -- 76 -- ' -- respectively -- identitas -- or -- differing -- a hydrocarbon group -- especially -- a carbon number -- one - four -- saturated hydrocarbon -- a radical (following, the same) -- it is -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- said -- R -- 94 -- R -- 95 -- R -- 96 -- or -- R -- 97 -- corresponding -- a radical -- it is -- X -- a halogen -- an atom -- it is -- .)

[0038] The 2nd manufacture approach of this invention performs said condensation by the Wittig-Horner (Wittig-Horner) reaction or the Wittig (Wittig) reaction, by processing said diphosphite and/or said diphosphonium salt by the base in a solvent, makes a carbanion generate and, specifically, carries out condensation to this carbanion and said 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde.

[0039] If a reaction scheme shows this condensation, it will become, for example like following reaction scheme 1'.

[0040]

[Formula 208]

[0041] this reaction -- first -- a general formula (19') -- by processing a compound with a base in a suitable solvent, it begins from generating a carbanion, and or

(20') is completed, when this carbanion next condenses with the aldehyde of a general formula [V']. The same thing as the above can be considered as a combination of a base and a solvent.

[0042] This reaction advances comparatively at low temperature (-30 degrees C - 30 degrees C), and in addition to purification of the specified substance by the chromatography being easy since it is alternative, since the 2nd compound of this invention has high crystallinity, it can raise purity with recrystallization. Although not asked especially about the approach of recrystallization, the approach of dissolving in an acetone and adding a hexane is simple, and subsequent solvent distilling off is also easy the approach. Ordinary temperature -30 degree C and ordinary pressure may perform this reaction in 3 - 24 hours.

[0043] Specifically by the 2nd manufacture approach of this invention, the bis(amino styryl) benzenoid expressed with said structure-expression (40)-1, (40)-2, (40)-3, (40)-4, (40)-5, (40)-6, or (40)-7 can be obtained.

[0044] This invention also offers various compounds suitable as synthetic intermediate field of the 1st compound of this invention again.

[0045] That is, it is 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde used as a synthetic intermediate product of bis(amino styryl) benzenoid which is expressed with said general formula [V] or [VI], and is first expressed with said general formula [I], [II], [III], or [IV].

[0046] This synthetic intermediate field (the synthetic intermediate field 1 of this invention are called hereafter.) It is expressed with said general formula (17) or (18). Specifically The following general formula (21), Or (26') it is expressed. (22), (23), (24), (25), and (26) -- the following structure expression (27) -1, (27)-2, (27)-3, and (27) -4, (27)-5, (27)-6, and (27) -7, (27)-8, (27)-9, and (27) -10, (27)-11, (27)-12, and (27) -- as -13, (27)-14, and (27)-15 It is illustrated.

[0047]

[Formula 209]

(However, in said general formula (21), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 210]

(However, in said general formula (22), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 211]

(However, in said general formula (23), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 212]

(However, in said general formula (24), R68 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[0048]

[Formula 213]

(However, in said general formula (25), R69 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[0049]

[Formula 214]

(However, in said general formula (26), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 215]

(However, in said general formula (26'), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[0050]

[Formula 216]

[0051] This invention also offers various compounds suitable as synthetic intermediate field of the 2nd compound of this invention again.

[0052] That is, it is 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde used as a synthetic intermediate product of bis(amino styryl) benzenoid which is expressed with said general formula [V'] or [VI'], and is expressed with said general formula [XIX].

[0053] This synthetic intermediate field (synthetic intermediate-field 1' of this invention is called hereafter.) are expressed with the following general formula (43), and are specifically illustrated as following structure-expression (41)-1,

(41)-2, (41)-3, (41)-4, (41)-5, (41)-6, or (41)-7.

[0054]

[Formula 217]

(However, in said general formula (43), the carbon number of R104 is the hydrocarbon group of the saturation of 1-6, or partial saturation.)

[0055]

[Formula 218]

[0056] The synthetic intermediate field 1 of this invention or 1' can be drawn as follows from the synthetic intermediate field as the precursor.

[0057] the following -- a general formula -- [-- IX --] -- or -- [-- X --] -- or -- the following -- a general formula -- [-- IX -- ' --] -- or -- [-- X -- ' --] -- expressing -- having -- The thoria reel amine used as synthetic intermediate field of the bis(amino styryl) benzenoid expressed with said general formula [I], [II], [III], or [IV] (the synthetic intermediate field 2 of this invention are called hereafter.) Or the thoria reel amine used as synthetic intermediate field of the bis(amino styryl) benzenoid expressed with said general formula [XIX] (synthetic intermediate-field 2' of this invention is called hereafter.) It formylates by the adduct of dimethylformamide and phosphorus oxychloride. said -- a screw (amino styryl) -- benzenoid -- composition -- intermediate field -- one -- or -- one -- ' -- ***** -- said -- a general formula -- [-- V --] -- or -- [-- VI --] -- or -- [-- V -- ' --]

--] -- or -- [-- VI -- ' --] -- expressing -- having -- four - (N and N-diaryl amino) -- a benzaldehyde -- obtaining . This formylation reaction can be performed at room temperature (20 degrees C) -80 degree C temperature in dimethylformamide, and ordinary pressure can perform it in 3 - 24 hours.

[0058]

[Formula 219]

however -- said -- a general formula -- [-- IX --] -- and -- [-- X --] -- [-- IX -- ' --] -- and -- [-- X -- ' --] -- setting -- R71 and R72 are the aryl groups equivalent to said R1, R2, R14, R15, R27, R28 and R40, or R41, respectively. R71' and R72' are the aryl groups equivalent to said R90 or R91, respectively. R73 and R74 are the aryl groups equivalent to said R3, R4, R16, R17, R29, R30 and R42, or R43, respectively, and R73' and R74' are the aryl groups equivalent to said R92 or R93, respectively.

[0059] And the synthetic intermediate field 2 of above-mentioned this invention or 2' said -- a general formula -- [-- IX --] -- or -- [-- X --] -- or -- [-- IX -- ' --] -- or -- [-- X -- ' --] -- expressing -- having -- concrete -- It is expressed with the following general formula (28) or (29). Still more specifically The following general formula (30), It is expressed with (31), (32), (33), (34), or (35). The following structure expression (36) It is illustrated as -1, (36)-2, (36)-3, (36)-4, (36)-5, (36)-6, (36)-7, (36)-8, (36)-9, (36)-10, or (36)-11.

[Formula 220]

[-- however, in said general formula (28) and (29), Ar1, Ar2, Ar3, and Ar4 are the same as said thing carried out respectively.

[0060]

[Formula 221]

(However, in said general formula (30), R65 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 2-6, or partial saturation.)

[Formula 222]

(However, in said general formula (31), R66 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[Formula 223]

(However, in said general formula (32), R67 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[0061]

[Formula 224]

(However, in said general formula (33), R68 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-4, or partial saturation.)

[0062]

[Formula 225]

(However, in said general formula (34), R69 is the hydrocarbon group of the

saturation of carbon numbers 1-4, or partial saturation.)

[0063]

[Formula 226]

(However, in said general formula (35), R70 is the hydrocarbon group of the saturation of carbon numbers 1-6, or partial saturation.)

[0064]

[Formula 227]

[0065] the following -- a general formula -- [-- IX --] -- or -- [-- X --] -- [-- IX -- ' --] -- or -- [-- X -- ' --] -- expressing -- having -- this invention -- composition -- intermediate field -- two -- or -- two -- ' -- as follows -- carrying out -- being compoundable .

[0066] [whether coupling of the halogenation benzene expressed with the diarylamine and the following general formula [XII] which are expressed with the following general formula [XI] or [XI'], or [XII'] is carried out under existence of a catalyst and a base, and] Or coupling of the aryl halide compound expressed with the diarylamine and the following general formula [XIV] which are expressed with the following general formula [XIII] or [XIII'], or [XIV'] is carried out under existence of a catalyst and a base. The synthetic intermediate field 2 or the thoria reel amine as 2' is obtained.

[0067]

[Formula 228]

however -- said -- a general formula -- [-- IX --] -- and -- [-- X --] -- [-- IX -- ' --]
-- and -- [-- X -- ' --] -- [-- XI --] -- and -- [-- XII --] -- [-- XI -- ' --] -- and -- [-- XII
-- ' --] -- [-- XIII --] -- and -- [-- XIV --] -- [-- XIII -- ' --] -- and -- [-- XIV -- ' --] --
setting -- R71 and R72 are the aryl groups equivalent to said R1, R2, R14, R15,
R27, R28 and R40, or R41, respectively. R71' and R72' are the aryl groups
equivalent to said R90 or R91, respectively. R73 and R74 are the aryl groups
equivalent to said R3, R4, R16, R17, R29, R30 and R42, or R43, respectively,
R73' and R74' are the aryl groups equivalent to said R92 or R93, respectively,
and X is a halogen atom.

[0068] Said catalysts used at the reaction which compounds the synthetic
intermediate field 2 of this invention or 2' are Cu, CuX, CuX₂, CuO, Pd (CH₃
COO)₂, Pd (PR₃)₄, etc. (R is a phenyl group or an alkyl group), and said bases
are K₂ CO₃, calcium₂ CO₃, NaOH, BuONa, PrONa, C₂ H₅ ONa, CH₃ ONa, etc.
Reaction temperature of reaction time is [this reaction] moreover, good at
100-200 degrees C and ordinary pressure as 2 - 48 hours in solvents, such as
dimethylformamide, dimethyl sulfoxide, a nitrobenzene, a dichlorobenzene, and
a xylene.

[0069] this invention -- again -- this invention -- the -- one -- and -- the -- two -- a
compound -- composition -- an intermediate product -- ***** -- said -- a general

formula -- [-- VII --] -- or -- [-- VII -- ' --] -- expressing -- having -- diphosphite --
or -- said -- a general formula -- [-- VIII --] -- or -- [-- VIII -- ' --] -- expressing --
having -- diposphonium -- a salt (the synthetic intermediate product 3 of this
invention is called hereafter.) -- providing -- a thing -- it is .

[0070] this synthetic intermediate field 3 -- concrete -- the following general
formula (19), (20), or the following general formula (19') -- or (20') it is expressed.

[0071]

[Formula 229]

(However, in said general formula (19), (20), (19'), and (20'), R75, R76, R75',
and R76' are the same as the above mentioned thing.)

[0072] The synthetic intermediate field 3 of this invention can be drawn as
follows from the synthetic intermediate field as the precursor.

[0073] the following -- a general formula -- [-- XV --] -- or -- [-- XV -- ' --] --
expressing -- having -- aryl halide -- a compound -- the following -- a general
formula -- [-- XVI --] -- expressing -- having -- phosphorous acid -- trialkyl -- or --
triphenyl phosphine (PPh₃) -- reacting -- making -- things -- said -- a general
formula -- [-- VII --] -- or -- [-- VIII --] -- [-- VII -- ' --] -- or -- [-- VIII -- ' --] --
expressing -- having -- diphosphite -- or -- diposphonium -- a salt -- as the
synthetic intermediate field 3 -- obtaining . This reaction is good as 30 minutes -
reaction-time 12 hours at the reaction temperature of 120-160 degrees C, and

ordinary pressure in solvents, such as a non-solvent, superfluous phosphorous acid trialkyl, or a xylene.

[0074]

[Formula 230]

(However, it sets to said general formula [XV] and [XV']. R77, R78, R79, and R80, respectively) It is a radical which is identitas or is different. Those at least one A hydrogen atom, a cyano group -- a nitro group -- or -- a halogen -- an atom -- it is -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, those at least one is a fluorine atom, and X is a halogen atom.

[0075] general formula [XVI] :P (OR81) 3 or -- P(OR82) 3 (however, in said general formula [XVI], R81 and R82 are the hydrocarbon groups of the saturation of identitas or a different hydrocarbon group, especially carbon numbers 1-4, or partial saturation, respectively, and are a radical equivalent to said R75 or R76, R75', or R76'.)

[0076] This invention also offers the aryl halide compound (the synthetic intermediate field 4 of this invention are called hereafter.) expressed with said general formula [XV] or [XV'] as synthetic intermediate field for obtaining the synthetic intermediate field 3 again.

[0077] The synthetic intermediate field 4 of this invention can be obtained by making the xylene compound expressed with the following general formula [XVII] or [XVII'], and N-halogenation succinimide expressed with the following general formula [XVIII] react to the bottom of an optical exposure. For example, it is made to react to the bottom of the exposure of the light of 100-500W by the reaction time of 30 minutes - 48 hours by the temperature of 20-60 degrees C, and ordinary pressure among solvents, such as a carbon tetrachloride, chloroform, and benzene, using the light source of a high pressure mercury vapor lamp, a low pressure mercury lamp, a xenon LGT, a halogen LGT, etc.

[0078]

[Formula 231]

(However, it sets to said general formula [XVII] and [XVII']. R77, R78, R79, and R80, respectively) It is a radical which is identitas or is different. Those at least one A hydrogen atom, a cyano group -- a nitro group -- or -- a halogen -- an atom -- it is -- R -- 77 -- ' -- R -- 78 -- ' -- R -- 79 -- ' -- and -- R -- 80 -- ' -- respectively -- mutual -- identitas -- or it is the radical chosen from a different hydrogen atom or a different halogen atom, and those at least one is a fluorine atom.

[0079]

[Formula 232]

(However, in said general formula [XVIII], X is a halogen atom.)

[0080] The following reaction scheme 2 and the reaction scheme 3, or 3' can show the reaction which obtains each synthetic intermediate fields 1-4 described above, respectively.

[0081]

[Formula 233]

[0082] This invention offers the still more suitable compound as synthetic intermediate field of the 1st and 2nd compounds of this invention again.

[0083] That is, this synthetic intermediate field are acetal compounds (the synthetic intermediate field 5 of this invention are called hereafter.) expressed with the following general formula (44), (45), or (46).

[Formula 234]

[-- said general formula (44), (45), and (46) -- setting -- Ar11, Ar12, Ar13, and Ar14 -- mutual -- identitas -- or the aryl group which is a different radical and is expressed with the following general formula (47) -- it is -- [Formula 235]

[however,]

(However, it sets to said general formula (47). R105, R106, R107, R108, and R109) mutual -- identitas -- or it is a different radical and is the radical chosen from a hydrogen atom, a hydrocarbon group, a hydrocarbon oxy-radical, or the hydrocarbon amino group. R103 And R104 the hydrocarbon group of saturation or partial saturation -- it is -- R103 R104 It is very good in the structure connected

by the chain.]

[0084] It faces obtaining the synthetic intermediate field 5 of this invention, coupling of the acetal compound expressed with the amine compound expressed with the following general formula (48) under existence of a catalyst and a base and the following general formula (49) when obtaining the acetal compound expressed with said general formula (44) is carried out, and it is [Formula 236].

In (said general formula (48 [however,]) and (49), Ar₁₁, Ar₁₂, R₁₀₃, and R₁₀₄ are the same as the above mentioned thing, and X is a halogen atom. Coupling of the aryl compound expressed with the acetal compound expressed with the following general formula (49') under existence of a catalyst and a base and the following general formula (50) when obtaining the acetal compound expressed with) and said general formula (45) is carried out, and it is [Formula 237].

(However, in said general formula (49') and (50), Ar₁₃, Ar₁₄, R₁₀₃, and R₁₀₄ are the same as the above mentioned thing.) X is a halogen atom. When obtaining the acetal compound expressed with said general formula (46), under existence of a catalyst and a base, coupling of the acetal compound expressed with the amine compound expressed with the following general formula (51) and the following general formula (52) is carried out, and ** is good.

[Formula 238]

(However, in said general formula (51) and (52), Ar13, R103, and R104 are the same as the above mentioned thing, and X is a halogen atom.)

[0085] As said catalyst used at the time of said coupling, it is good for the following Pd(O)-phosphine complex to work as active species.

a Pd(O)-phosphine complex -- {-- however, Pd (O) may be added as a reagent of Pd (O), Pd (I), and Pd (II), and a phosphine is the 3rd class phosphine expressed with the following general formula (53) or (54).

[Formula 239]

[-- however, in said general formula (53) and (54), R105 and R106 are the hydrocarbon groups of saturation or partial saturation, and Q is very good in the bridged structure which is expressed with a hydrocarbon group, the following general formula (55), or (56).

General formula (55):-(CH₂)_n-G-(CH₂)_n-general formula (56) :-Ar15-G-Ar16-(however, in said general formula (55) and (56), G is oxygen atom, sulfur atom, amino-group, hydrocarbon-group, or metal atom, and Ar15 and Ar16 are aryl groups which may have substituent.))}

[0086] And it is advantageous to obtain 4-(N and N-diaryl amino) benzaldehyde compound expressed with the following general formula (57), (58), or (59) by carrying out acetal exchange of the acetal compound expressed with (the synthetic intermediate field 5 of this invention, i.e., the following general formula,

(44), and 45), or (46) under existence of an acid catalyst or a base catalyst among a ketone solvent.

[Formula 240]

[-- said general formula (44), (45), and (46) -- setting -- Ar11, Ar12, Ar13, and Ar14 -- mutual -- identitas -- or the aryl group which is a different radical and is expressed with the following general formula (47) -- it is -- [Formula 241]

[however,]

(However, it sets to said general formula (47). R105, R106, R107, R108, and R109) mutual -- identitas -- or it is a different radical and is the radical chosen from a hydrogen atom, a hydrocarbon group, a hydrocarbon oxy-radical, or the hydrocarbon amino group. R103 And R104 the hydrocarbon group of saturation or partial saturation -- it is -- R103 R104 It is very good in the structure connected by the chain.]

[Formula 242]

(However, in said general formula (57), (58), and (59), Ar11, Ar12, Ar13, and Ar14 are the same as the above mentioned thing.)

[0087] Here, as a compound of the above-mentioned general formula (44), the following are specifically mentioned.

[Formula 243]

[0088] As a combination of the above-mentioned acid catalyst and a solvent,

moreover, a sulfuric acid/methanol, A hydrochloric acid/methanol, DCC-SnCl₄ / oxalic acid / alcohol, Trifluoroacetic acid / dimethoxymethane / nitromethane, p-toluenesulfonic acid/dimethoxymethane / methanol, A hydrochloric acid / tetramethoxy silane / methanol, p-toluenesulfonic acid/acetone, Trifluoroacetic acid / chloroform / water, tetra-chloro titanium / lithium iodide / diethylether, Silica gel / acetic-acid/water, formic acid/pentane, acetic-acid / zinc-silver / tetrahydrofuran, p-toluenesulfonic-acid pyridinium / acetone-water, and water-methylene chloride is mentioned.

[0089] Moreover, about the catalyst for the above-mentioned coupling, although the yield of coupling could be raised by using a palladium catalyst [Pd (CH₃ COO)₂], when the following catalyst system was further applied about the reactant low system, yield has been improved (however, the following catalyst system is not used in the below-mentioned example).

[Formula 244]

[0090] that palladium should just be Pd (O) in the system of reaction, Pd (II) is returned by Pd(CH₃ COO)₂-PPh₄, and it is thought that Pd (O) has occurred a system -- PPh₄ (however, a phosphine -- the surroundings of Lynn -- ** -- it is high and two face angles of C-P-C are made good [the larger one].) About the concrete structure of the active species in the system of reaction of the above Pd(O)-phosphines, it does not understand well.

[0091] The typical combination of a palladium catalyst system is Pd complex, the 3rd class phosphine, a base, a xylene solvent, and reflux 2 - 10 hours.

[0092] Said general formula (57) or the benzaldehyde of (58) Like the synthetic intermediate field 1 or 1' mentioned above, specifically The above mentioned structure expression (27) It may be expressed with -1, (27)-2, (27)-3, (27)-4, (27)-5, (27)-6, (27)-7, (27)-8, (27)-9, (27)-10, or (27)-11.

[0093] Although a phosphorus oxychloride (POCl₃)-dimethylformamide (DMF) adduct is used in order to obtain the synthetic intermediate product 1 of this invention or 1' expressed with the general formula [V] mentioned above, [VI], [V'], or [VI'] and to change into an aldehyde the tertiary amine which is the synthetic intermediate product 2 or 2', the trouble like the following may arise by this approach.

[0094] When tertiary amine has substituents, such as a cyano group, and wears electronic suction nature, a phosphorus oxychloride-dimethylformamide adduct cannot react easily.

[Formula 245]

[0095] By the approach by the phosphorus oxychloride-dimethylformamide adduct, the site selectivity of a reaction has a low active site two or more points at a certain time.

[Formula 246]

[0096] Then, the target aldehyde is easily compoundable with sufficient site selectivity using said general formula (49) or (49') the acetal compound of (52) by making this react with the compound of a general formula (48), (50), or (51). If a reaction scheme shows the synthetic approach of the compound of this invention including this reaction, it will become being, for example like the following reaction schemes 4, 5, and 6.

[0097] (1) Composition of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16)-9) [** 247]

[0098] (2) Composition of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16)-8) [** 248]

[0099] (3) Composition of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16)-3) [** 249]

[0100] Drawing 45 - drawing 48 show the example of the organic electroluminescence devices (EL element) which use the compound of this invention as an organic luminescent material, respectively.

[0101] Drawing 45 is the transparency mold organic electroluminescence devices A to which the luminescence light 20 penetrates cathode 3, and luminescence 20 can be observed also from a protective layer 4 side. Drawing 46 shows the reflective mold organic electroluminescence devices B which also obtain the reflected light in cathode 3 as a luminescence light 20.

[0102] Among drawing, one is a substrate for forming organic electroluminescence devices, and can use glass, plastics, and other proper ingredients. Moreover, a substrate can also be shared when using organic electroluminescence devices combining other display devices. 2 -- a transparent electrode (anode plate) -- it is -- ITO (Indium tin oxide) and SnO₂ etc. -- it can be used.

[0103] Moreover, 5 is an organic luminous layer and contains the compound of this invention as a luminescent material. About this luminous layer, well-known various configurations can be conventionally used as lamination which obtains organic electroluminescence 20. When the ingredient which constitutes an electron hole transportation layer or an electron transport layer has a luminescence so that it may mention later for example, the structure which carried out the laminating of these thin films can be used. Furthermore, in order to raise charge transportability ability in the range which fills the purpose of this invention, both an electron hole transportation layer, and both [either or] bar using the structure which carried out the laminating of the thin film of two or more sorts of ingredients, or the thin film which consists of a presentation which mixed two or more sorts of ingredients. Moreover, in order to improve the luminescence engine performance, the ingredient of at least one or more sorts of fluorescence may be used, and the structure which pinched this thin film between the electron

hole transportation layer and the electron transport layer, and the structure where the ingredient of at least one or more sorts of fluorescence was further included in an electron hole transportation layer, electron transport layers, or these both may be used. In order to improve luminous efficiency in these cases, it is also possible to include the thin film for controlling transportation of an electron hole or an electron in the lamination.

[0104] When the compound of this invention has both electronic transportability ability and electron hole transportability ability, it is possible during a component configuration to use also as a luminous layer which served as the electron hole transportation layer also as a luminous layer which served both as the electron transport layer. Moreover, it is also possible to consider as the configuration put in the electron transport layer and the electron hole transportation layer by making the compound of this invention into a luminous layer.

[0105] In addition, among drawing 45 and drawing 46, three are cathode and can use the alloy of a metal [activity / calcium / Li, Mg,] and metals, such as Ag, aluminum, and In, or the structure which carried out the laminating of these as an electrode material. In the organic electroluminescence devices of a transparency mold, the light transmittance suitable for an application can be obtained by adjusting the thickness of cathode. Moreover, among drawing, four are the closure and a protective layer and the effectiveness goes up them by

making the organic whole electroluminescence devices into wrap structure. A proper ingredient can be used if airtightness is maintained. Moreover, 8 is a drive power source for current impregnation.

[0106] In these organic electroluminescence devices, the organic layer has the organic laminated structure (single hetero structure) to which the laminating of an electron hole transportation layer and the electron transport layer was carried out, and the compound of this invention may be used as a formation ingredient of an electron hole transportation layer or an electron transport layer. Or the organic layer has the organic laminated structure (double hetero structure) to which the laminating of an electron hole transportation layer, a luminous layer, and the electron transport layer was carried out one by one, and the compound of this invention may be used as a formation ingredient of a luminous layer.

[0107] When the example of the organic electroluminescence devices which have such an organic laminated structure is shown, drawing 47 has the laminated structure to which the laminating of organic layer 5a which consists of an anode plate 2, and the electron hole transportation layer 6 and electron transport layer 7 of translucency on the substrate 1 of translucency, and the cathode 3 was carried out one by one, and is the organic electroluminescence devices C of the single hetero structure where a protective coat 4 comes to carry out the closure of this laminated structure.

[0108] In the case of the lamination which omitted the luminous layer as shown in drawing 47, the luminescence 20 of predetermined wavelength is generated from the interface of the electron hole transportation layer 6 and an electron transport layer 7. These luminescence is observed from a substrate 1 side.

[0109] Moreover, drawing 48 has the laminated structure to which the laminating of organic layer 5b which consists of an anode plate 2, and the electron hole transportation layer 10, the luminous layer 11 and electron transport layer 12 of translucency on the substrate 1 of translucency, and the cathode 3 was carried out one by one, and is the organic electroluminescence devices D of the double hetero structure where a protective coat 4 comes to carry out the closure of this laminated structure.

[0110] In the organic electroluminescence devices shown in drawing 48, the electron with which the electron hole poured in from the anode plate 2 was poured in from cathode 3 through the electron hole transportation layer 10 reaches a luminous layer 11 through an electron transport layer 12, respectively by impressing direct current voltage between an anode plate 2 and cathode 3. Consequently, the recombination of an electron/electron hole arises in a luminous layer 11, a singlet exciton generates, and luminescence of predetermined wavelength is generated from this singlet exciton.

[0111] In each organic electroluminescence devices C and D mentioned above,

the ingredient of light transmission nature, such as glass and plastics, can be suitably used for a substrate 1. Moreover, when using combining other display devices, or when arranging the laminated structure shown in drawing 47 and drawing 48 in the shape of a matrix, it is good considering this substrate as common use. Moreover, Components C and D can all take any structure of a transparency mold and a reflective mold.

[0112] moreover, the anode plate 2 -- a transparent electrode -- it is -- ITO (indium tin oxide) and SnO₂ etc. -- it can be used. Between this anode plate 2 and the electron hole transportation layer 6 (or electron hole transportation layer 10), the thin film which consists of the organic substance or an organometallic compound may be prepared in order to improve the injection efficiency of a charge. In addition, when the protective coat 4 is formed with conductive ingredients, such as a metal, the insulator layer may be prepared in the side face of an anode plate 2.

[0113] Moreover, the electron hole transportation layer 6 and an electron transport layer 7 are organic layers by which the laminating was carried out, the compound of this invention described above to these either or both sides contains organic layer 5a in the organic electroluminescence devices C, and it is good as the luminescent electron hole transportation layer 6 or a luminescent electron transport layer 7. Organic layer 5b in the organic electroluminescence

devices D can take various laminated structures, although the electron hole transportation layer 10, the luminous layer 11 containing the compound of above-mentioned this invention, and an electron transport layer 12 are organic layers by which the laminating was carried out. For example, both the electron hole transportation layer, and both [either or] may have a luminescence.

[0114] Moreover, although it is desirable that it is the layer which the electron hole transportation layer 6 or an electron transport layer 7, and a luminous layer 11 turn into from the compound of this invention especially, these layers may be formed only with the compound of this invention, or you may form by the compound of this invention, other electron holes, or vapor codeposition with electronic transportation ingredients (for example, aromatic amine and pyrazolines etc.). Furthermore, in an electron hole transportation layer, in order to raise electron hole transportability ability, the electron hole transportation layer which carried out the laminating of two or more sorts of electron hole transportation ingredients may be formed.

[0115] Moreover, in the organic electroluminescence devices C, although a luminous layer may be the electronic transportability luminous layer 7, depending on the electrical potential difference impressed from a power source 8, light may be emitted by the electron hole transportation layer 6 or its interface. Similarly, in the organic electroluminescence devices D, a luminous layer may

be an electron transport layer 12 in addition to layer 11, and may be the electron hole transportation layer 10. In order to raise the luminescence engine performance, it is good that it is the structure where the luminous layer 11 which used at least one sort of fluorescence ingredients was made to pinch between an electron hole transportation layer and an electron transport layer. Or the structure where an electron hole transportation layer, an electron transport layer, or both [these] layers were made to contain this fluorescence ingredient may be constituted. In such a case, in order to improve luminous efficiency, it is also possible to include the thin films (a hole blocking layer, exciton generation layer, etc.) for controlling transportation of an electron hole or an electron in the lamination.

[0116] Moreover, you may be the structure in which could use the alloy of a metal [activity / calcium / Li, Mg,] and metals, such as Ag, aluminum, and In, as an ingredient used for cathode 3, and these metal layers carried out the laminating. In addition, the organic electroluminescence devices corresponding to an application are producible by choosing the thickness and the quality of the material of cathode suitably.

[0117] Moreover, a protective coat 4 acts as closure film, is making the organic whole electroluminescence devices into wrap structure, and can improve charge injection efficiency and luminous efficiency. In addition, if the airtightness is

maintained, a single metal or alloys, such as aluminum, gold, and chromium, etc. can choose the ingredient suitably.

[0118] Although the current impressed to each above-mentioned organic electroluminescence devices is usually a direct current, pulse current and an alternating current may be used. If a current value and an electrical-potential-difference value are within the limits which does not carry out component destruction, there will be especially no limit, but when the power consumption and the life of organic electroluminescence devices are taken into consideration, it is desirable to make light emit efficiently with as small electrical energy as possible.

[0119] Next, drawing 49 is the example of a configuration of the flat-surface display which used organic electroluminescence devices. In the full color display, like illustration, red (R) and the green organic layer 5 (5a, 5b) which can emit light in the three primary colors of (G) and blue (B) are allotted between cathode 3 and an anode plate 2. It can prepare in the shape of [which crosses mutually] a stripe, it is chosen by the luminance-signal circuit 14 and the control circuit 15 with a built-in shift register, and a signal level is impressed to each, and cathode 3 and an anode plate 2 are constituted so that the organic layer of the location (pixel) where the cathode 3 and the anode plate 2 which were chosen by this cross may emit light.

[0120] That is, it is a 8x3RGB simple matrix, and drawing 49 arranges the layered product 5 which consists of one side between cathode 3 and an anode plate 2, even if there are few electron hole transportation layers, and luminous layers and electron transport layers either (refer to drawing 47 or drawing 48). Both cathode and an anode plate are made to intersect perpendicularly in the shape of a matrix mutually, impress a signal level serially by the control circuits 15 and 14 with a built-in shift register, and they are constituted so that light may be emitted in the decussation location, while carrying out patterning to the shape of a stripe. Of course, the EL element of this configuration can be used also as picture reproducer as a display of an alphabetic character, a notation, etc. Moreover, the stripe-like pattern of cathode 3 and an anode plate 2 is arranged for every color of red (R), green (G), and blue (B), and it becomes possible to constitute multicolor or all full color solid-state mold flat-panel displays.

[0121]

[Example] Hereafter, although this invention is concretely explained about an example, this invention is not limited to the following examples.

[0122] Example 1 <example of composition of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -1)> [0123]

[Formula 250]

[0124] It stirred at 125 degrees C for 30 minutes after dropping phosphorous

acid triethyl 794mg (4.78mmol) at 2 and 5-JI (bromomethyl)-tele phthalonitrile 750mg (2.39mmol), and diphosphite (19a) was obtained. The ethyl bromide produced by the reaction was distilled off, and it dissolved and saved at anhydrous tetrahydrofuran (THF) 25ml.

[0125] Anhydrous tetrahydrofuran 70ml was made to suspend sodium hydride 18.5mmol, the anhydrous tetrahydrofuran solution (an equivalent for 2.39mmol) of the diphosphite (19a) obtained above under nitrogen-gas-atmosphere mind was dropped over 15 minutes, and it stirred at the room temperature after that for 20 minutes.

[0126] Next, 4-[N-phenyl-N-(4-ethoxy phenyl) amino] After the benzaldehyde ((27) -1) 1.78g (5.60mmol) anhydrous tetrahydrofuran solution (40ml) was dropped over 15 minutes, it stirred at the room temperature for 2 hours and 30 minutes. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and it washed with saturation brine, and dried with anhydrous sodium sulfate.

[0127] 900mg ((16) -1) of bis(amino styryl) benzenoids was obtained by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's =s 1:8) refining the specified substance from this reaction mixture, and recrystallizing [hexane / acetone-]. This yield was [140 degrees C and the glass transition point's melting point] 180 degrees C 51%. 475nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran

solution were 590nm. Moreover, the ¹H NMR spectrum was as being shown in drawing 1 and the following (below peak; of the trimethylsilane which is the reference material added at the time of ¹H NMR spectrum measurement in addition, TMS in drawing is the same).

NMR (CDCl₃) 7.40 (4H, d) delta (ppm): 1.32 (6H, t), 4.03 (4H, q), 6.83 (4H, d), 6.98-7.22 (22H, m), 7.98 (2H, s) [0128] Example 2 <the synthetic example which is bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -1)> [Formula 251]

[0129] 2 and 5-JI (bromomethyl)-tele phthalonitrile 750mg (2.39mmol) and triphenyl phosphine 1.38g (5.26mmol) were dissolved in the xylene, and it flowed back for 20 hours. After having cooled the reaction solution to the room temperature, carrying out the produced settlings the ** exception and washing them by xylene 5ml, reduced pressure drying was carried out, and it dissolved and saved at anhydrous tetrahydrofuran 25ml.

[0130] Anhydrous tetrahydrofuran 70ml was made to suspend sodium hydride 18.5mmol, the anhydrous tetrahydrofuran solution (an equivalent for 2.39mmol) of the diphosphonium (20a) obtained above under nitrogen-gas-atmosphere mind was dropped over 15 minutes, and it stirred at the room temperature after that for 48 hours.

[0131] Next, 4-[N-phenyl-N-(4-ethoxy phenyl) amino] After the benzaldehyde ((27) -1) 1.78g (5.60mmol) anhydrous tetrahydrofuran solution (40ml) was

dropped over 15 minutes, it stirred at the room temperature for 2 hours and 30 minutes. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and it washed with saturation brine, and dried with anhydrous sodium sulfate.

[0132] 558mg ((16) -1) of bis(amino styryl) benzenoids was obtained by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's =s 1:8) refining, and recrystallizing [hexane / acetone-]. This yield is 31% and many physical-properties values were in agreement with the bis(amino styryl) benzenoid ((16) -1) obtained in the example 1.

[0133] Example 3 <example of composition of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -2)> [0134]

[Formula 252]

[0135] Anhydrous tetrahydrofuran 20ml was made to suspend sodium hydride 11.3mmol, the anhydrous tetrahydrofuran solution (an equivalent for 1.13mmol) of the diphosphite (19a) obtained in the example 1 under nitrogen-gas-atmosphere mind was dropped over 15 minutes, and it stirred at the room temperature after that for 20 minutes.

[0136] Next, 4-[N and N-JI (4-methoxypheny) amino] After the benzaldehyde ((27) -2) 750mg (2.25mmol) anhydrous tetrahydrofuran solution (40ml) was dropped over 15 minutes, it stirred at the room temperature for 1 hour. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and it washed with saturation brine, and

dried with anhydrous sodium sulfate.

[0137] 488mg ((16) -2) of bis(amino styryl) benzenoids was obtained by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's =s 1:8) refining the specified substance from this reaction mixture, and recrystallizing [hexane / acetone-]. This yield was [130 degrees C and the glass transition point's melting point] 170 degrees C 31%. 486nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 620nm. Moreover, the ¹H NMR spectrum was as being shown in drawing 2 and the following.

NMR (CDCl₃) delta (ppm):3.81 (12H, s), 6.84 (12H, m), 7.05 (8H, d), 7.19 (2H, d), 7.39 (4H, d), 7.98 (2H, s) [0138] Example 4 <example of composition of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -4)> [0139]

[Formula 253]

[0140] Anhydrous tetrahydrofuran 20ml was made to suspend sodium hydride 11.3mmol, the anhydrous tetrahydrofuran solution (an equivalent for 1.13mmol) of the diphosphite (19a) obtained in the example 1 under nitrogen-gas-atmosphere mind was dropped over 15 minutes, and it stirred at the room temperature after that for 20 minutes.

[0141] Next, 4-[N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] After the benzaldehyde ((27) -4) 728mg (2.25mmol) anhydrous tetrahydrofuran solution (12ml) was dropped over

15 minutes, it stirred at the room temperature for 2 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and it washed with saturation brine, and dried with anhydrous sodium sulfate.

[0142] 546mg ((16) -4) of bis(amino styryl) benzenoids was obtained by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's =s 1:8) refining the specified substance from this reaction mixture, and recrystallizing [hexane / acetone-]. This yield was [150 degrees C and the glass transition point's melting point] 210 degrees C 63%. 461nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 550nm. Moreover, the ¹H NMR spectrum was as being shown in drawing 3 and the following.

NMR (CDC13) delta (ppm):6.97 (4H, d), 7.02 (2H, s), 7.25-7.49 (26H, m), 7.81 (2H, d), 7.92 (4H, d), 7.97 (2H, s) [0143] Example 5 <example of composition of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -5)> [0144]

[Formula 254]

[0145] Anhydrous tetrahydrofuran 20ml was made to suspend sodium hydride 11.3mmol, the anhydrous tetrahydrofuran solution (an equivalent for 1.13mmol) of the diphosphite (19a) obtained in the example 1 under nitrogen-gas-atmosphere mind was dropped over 15 minutes, and it stirred at the room temperature after that for 20 minutes.

[0146] Next, after the 4-[N-(1-naphthyl)-N-(4-methoxyphenyl) amino] benzaldehyde ((27) -5) 761mg (2.25mmol) anhydrous tetrahydrofuran solution (12ml) was dropped over 15 minutes, it stirred at the room temperature for 2 hours. Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and it washed with saturation brine, and dried with anhydrous sodium sulfate.

[0147] 386mg ((16) -5) of bis(amino styryl) benzenoids was obtained by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's =s 1:8) refining the specified substance from this reaction mixture, and recrystallizing [hexane / acetone-]. This yield was [130 degrees C and the glass transition point's melting point] 190 degrees C 43%. 465nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of a tetrahydrofuran solution were 555nm.

[0148] Example 6<4-[N and N-JI (4-methoxyphenyl) amino] Synthetic example [of a benzaldehyde (structure expression (27) -2)] > [0149]

[Formula 255]

[0150] After 25ml of N and N-JI (4-methoxyphenyl) aniline ((36) -2) 1.75g anhydrous dimethylformamide solutions was continuously dropped [1.76g (11.5mmol) of phosphorus oxychloride] under stirring in anhydrous dimethylformamide and dropped at the room temperature, reaction temperature was raised and it stirred at 70 degrees C for 90 minutes.

[0151] After cooling to the room temperature and quenching on ice, the reaction solution was extracted with toluene, and it washed with saturation brine, and dried on anhydrous sodium sulfate.

[0152] The silica gel chromatography (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane = 1:4) refined the specified substance from this resultant, and 0.750g ((27) -2) of compounds was obtained. This yield was 39% and that 1 HNMR spectrum was as being shown in drawing 4 and the following.

NMR (CDCl₃) delta (ppm):3.81 (6H, s), 6.82 (2H, d), 6.90 (4H, d), 7.13 (4H, d), 7.62 (2H, d), 9.78 (1H, s) [0153] Example 7 <example of composition of N and N-Jl (4-methoxypheny) aniline (structure expression (36) -2)> [0154]

[Formula 256]

[0155] N and N-Jl (4-methoxypheny) amine (31a) 1.00g (4.46mmol), Iodobenzene (32a) 1.00g (4.90mmol), t-BuONa0.502g (5.23mmol), and Pd(CH₃COO)₂ 0.010g (0.044mmol) are dissolved in an anhydrous xylene. After P(But)₃ 1.0ml of 0.237M was dropped at the pan, flowing back under nitrogen-gas-atmosphere mind, it flowed back for 4 hours.

[0156] The silica gel chromatography (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane = 1:4) refined this resultant, the eluate was *****ed from the acetone-hexane, and the compound ((36) -2) was obtained. This yield was 1.17g (88% of yield). Moreover, the 1 HNMR spectrum was as being shown in

drawing 5 and the following.

NMR (CDCl₃) delta (ppm): 3.80 (6H, s), 6.80 (4H, d), 6.82 (1H, t), 6.92 (2H, d), 7.02 (4H, d), 7.17 (2H, t) [0157] Example 8 <the synthetic example which is an N-(1-phenyl)-N-(4-ethoxy phenyl) aniline (structure expression (36) -1)> [Formula 257]

[0158] After P(But)₃ 17ml of 0.237M was dropped at the pan, having dissolved N and N-diphenylamine (31a) 8.20g (50mmol), iodine anisole (32a) 12.40g (50mmol), t-BuONa 5.76g (60mmol), and Pd(CH₃COO)₂ 0.224g (1.00mmol) in the dichlorobenzene, and flowing back under nitrogen-gas-atmosphere mind, it flowed back for 4 hours.

[0159] The column chromatography (an alumina, hexane:toluene = 4:1) refined, the eluate was *****ed from the acetone-hexane, and the specified substance was obtained. This yield is 10.9g (79% of yield), and shows 1 HNMR spectrum to drawing 6 and the following.

NMR (CDCl₃) delta (ppm): 2.28 (3H, t), 4.02 (2H, q), 6.84 (2H, d), 6.94 (2H, t), 7.03 (4H, d), 7.06 (2H, d), 7.20 (4H, t) [0160] an example 9 <the synthetic example of 2 and 5-JI (BUROMO triphenyl phospho methyl) tele phthalonitrile (structure expression (20a))> -- [Formula 258]

[0161] 2 and 5-JI (bromomethyl) tele phthalonitrile (35a) 750mg (2.39mmol) and triphenyl phosphine 1.38g (5.26mmol) were dissolved in the xylene, and it

flowed back for 20 hours. After having cooled the reaction solution to the room temperature, carrying out the produced settlings the ** exception and washing them by xylene 5ml, reduced pressure drying was carried out, and it dissolved and saved at anhydrous tetrahydrofuran 25ml. The diphosphonium (20a) stated in the example 2 was obtained by this.

[0162] Example 10 <example of composition of 2 and 5-JI (bromomethyl) tele phthalonitrile (structure expression (35a))> [0163]

[Formula 259]

[0164] 2 and 5-dimethyl tele phthalonitrile (36a) 1.00g (6.4mmol) and 8.10g (NBS) (37a) of N-bromosuccinimide (90mmol) were melted with 500ml chloroform, and it flowed back for 48 hours, irradiating a high pressure mercury vapor lamp (400W).

[0165] The solvent was distilled off and the compound (35a) was alternatively obtained as a white crystal by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's =s 1:4) refining a resultant, and *****ing the obtained eluate from an acetone-hexane twice. This yield was 698mg (34% of yield), and that 1 HNMR spectrum was as being shown in drawing 7 and the following.

NMR(CDCI₃) delta(ppm): 4.60 (4H, s), 7.83(2H, s) [0166] Example 11 <example of composition of N-(p-toluyI)-N and N-diphenylamine (structure expression (36)-6)> [0167]

[Formula 260]

[0168] N and N-diphenylamine (31a) 9.70g (57.3mmol), 4-iodine toluene (32b) 12.5g (57.3mmol), t-BuONa 6.61g (68.8mmol), Pd(CH₃COO)₂ 260mg (1.15mmol), and triphenyl phosphine 1.20g (4.58mmol) were dissolved in the xylene, and it flowed back under nitrogen-gas-atmosphere for 4 hours.

[0169] Insoluble matter was carried out the ** exception, alumina chromatography (300 meshes of neutral aluminas, a tetrahydrofuran:hexane = 1:4) refined, the eluate was *****ed from the acetone-hexane, and the specified substance ((36) -6) was obtained quantitatively. ¹H NMR spectrum of this product ((36) -6) is shown in drawing 8 and the following.

NMR(CDCl₃) delta(ppm): 2.31 (3H, s), 6.94-7.27 (14H, m) [0170] Example 12<4-[N-(p-toluyI)-N-phenylamino] Synthetic example [of a benzaldehyde (structure expression (27) -6)] > [0171]

[Formula 261]

[0172] a room temperature -- bottom of stirring, and anhydrous dimethylformamide (DMF) 50ml -- after 50ml of N-(p-toluyI)-N and N-diphenylamine ((36) -6) 5.04g (19.4mmol) anhydrous dimethylformamide (DMF) solutions was continuously dropped [5.96g (38.9mmol) of phosphorus oxychloride] and dropped at inside, reaction temperature was raised and it stirred at 70 degrees C for 90 minutes.

[0173] It cooled to the room temperature, reaction mixed liquor was quenched on little ice, the silica gel chromatography (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane = 1:4) refined, and the oil-like matter ((27) -6) was obtained almost quantitatively. ¹ HNMR spectrum of this product is shown in drawing 9 and the following.

NMR(CDCI₃) delta(ppm): 7.66 (2H, d) 2.35 (3H, s), 6.96-7.64 (11H, m), 9.80 (1H, s) [0174] Example 13 <example of composition of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -6)> [0175]

[Formula 262]

[0176] Anhydrous tetrahydrofuran (THF) 20ml was made to suspend sodium hydride 14.5mmol, and under nitrogen-gas-atmosphere mind, the anhydrous tetrahydrofuran solution (an equivalent for 2.33mmol) of diphosphite (19a) was dropped, and it stirred for 60 minutes. Next, 4-[N-(p-toluyI)-N-phenylamino] After the benzaldehyde ((27) -6) 1.34g (4.66mmol) anhydrous tetrahydrofuran solution (40ml) was dropped, it stirred at the room temperature for 12 hours.

[0177] Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and it washed with saturation brine, and dried on anhydrous sodium sulfate. 0.787g ((16) -6) of bis(amino styryl) benzenoids was obtained by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's ='s 1:4->'s1:1) refining, and recrystallizing [hexane / acetone-]. This yield is 49% and shows ¹ HNMR

spectrum to drawing 10 and the following.

NMR(CDCI₃) delta(ppm): 7.42 (4H, d) 2.34 (6H, s), 7.01-7.30 (26H, m), 7.99 (2H, s)

[0178] 469nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of the tetrahydrofuran solution of this matter ((16) -6) were 568nm.

[0179] Example 14<N and N-JI (synthetic example [of p-toluyI-N-phenylamine (structure expression (36) -7)] > [0180])

[Formula 263]

[0181] N and N-JI (p-toluyI) amine (31b) 10.0g (50.7mmol), 4-iodobenzene 10.3g (50.7mmol), t-BuONa5.85g (60.8mmol), Pd(CH₃ COO)₂ 300mg (1.34mmol), and triphenyl phosphine 1.50g (5.71mmol) were dissolved in xylene 500ml, and it flowed back under nitrogen-gas-atmosphere mind for 4 hours.

[0182] Insoluble matter was carried out the ** exception, alumina chromatography (300 meshes of neutral aluminas, a tetrahydrofuran:hexane = 1:4) refined, the eluate was *****ed from the acetone-hexane, and the specified substance ((36) -7) was obtained quantitatively. ¹ HNMR spectrum of this product is shown in drawing 11 and the following.

NMR(CDCI₃) delta(ppm): 2.30 (6H, s), 6.90-7.07 (11H, m), 7.16-7.22 (2H, m)

[0183] Example 15<4-[N and N-JI (p-toluyI) amino] Synthetic example [of a

benzaldehyde (structure expression (27) -7)] > [0184]

[Formula 264]

[0185] a room temperature -- bottom of stirring, and anhydrous dimethylformamide (DMF) 20ml -- after 50ml of N and N-Jl (p-toluyI)-N-phenylamine ((36) -7) 7.00g (25.6mmol) anhydrous dimethylformamide solutions was continuously dropped [5.90g (38.4mmol) of phosphorus oxychloride] and dropped at inside, it stirred at the room temperature for 24 hours.

[0186] After quenching reaction mixed liquor on little ice, it extracts with toluene and washes with saturation brine, and it is Na₂ SO₄. It dried in the top. The silica gel chromatography (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane = 1:4) refined, and the oil-like matter ((27) -7) was obtained almost quantitatively. 1 HNMR spectrum of this product is shown in drawing 12 and the following.

NMR(CDCI₃) delta(ppm): 2.35 (6H, s), 6.93 (2H, d), 7.06 (4H, d), 7.15 (4H, d),

7.64 (4H, d), 9.78 (1H, s) [0187] Example 16 <example of composition of

bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -7)> [0188]

[Formula 265]

[0189] Anhydrous tetrahydrofuran (THF) 20ml is made to suspend sodium hydride 14.3mmol, 20ml of anhydrous tetrahydrofuran solutions of 750mg of diphosphite (19a) (2.39mmol) is dropped under nitrogen-gas-atmosphere mind,

and then it is 4-[N and N-JI (p-toluyI) amino]. After the benzaldehyde ((27) -7) (equivalent for 2.39mmol) 25ml anhydrous tetrahydrofuran solution was dropped, it stirred at the room temperature for 48 hours.

[0190] Reaction mixed liquor was quenched on little ice, and it washed with saturation brine, and dried on anhydrous sodium sulfate. 431mg ((16) -7) of bis(amino styryl) benzenoids was obtained by a silica gel chromatography's (WAKO-gel C-300, a tetrahydrofuran:hexane's =s 1:4->'s1:1) refining, and recrystallizing [hexane / acetone-]. This yield is 25% and shows 1 HNMR spectrum to drawing 13 and the following.

NMR(CDCI₃) delta(ppm): 7.39 (4H, d) 2.33 (6H, s), 6.97-7.21 (24H, m), 7.97 (2H, s)

[0191] 476nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption maximum of the tetrahydrofuran solution of this matter were 590nm.

[0192] Example 17 <the synthetic example which is bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -9)> [Formula 266]

[0193] (1) synthetic acetal compound (51) 2.75g (10.2mmol) of intermediate field (53), aniline (52) 20ml (215mmol), t-BuONa1.00g (10.4mmol), and Pd(OAc)₂ while dissolving 0.022g (0.047mmol) in xylene 150ml and flowing back under nitrogen-gas-atmosphere mind -- further -- after P(t-Bu)₃ 2.0ml (0.20mmol) of 0.1M was dropped, it flowed back for 6 hours. Except for the source material, the

superfluous aniline was distilled off in vacuum distillation with the alumina column chromatography (200 meshes, toluene:THF=1:1), and intermediate field (53) were obtained quantitatively.

[0194] The specified substance (53) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement.

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm): -- 0.80 (3H, s) and 1.30 (3H, s) -- 3.63 (2H, d), 3.76 (2H, d), 5.34 (1H, s), 5.74 (1H, brs), 6.92 (1H, t), 7.06 (4H, d), 7.26 (2H, t), 7.39 (2H, d) intermediate field (53) ¹HNMR spectrum is shown in drawing 14.

[0195] (2) It is 50ml CHCl₃ about synthetic compound (54) 5.00g (28.9mmol) of intermediate field (55). It dissolves, and after adding 0.2ml CF₃ SO₃ H, cooling at 0 degree C and stirring under nitrogen-gas-atmosphere mind, bubbling of the isobutylene gas was slowly carried out over 3 hours. 6ml NEt₃ It added, the reaction solution was neutralized, the solvent was distilled off except for the source material through the dry alumina (300 meshes, toluene), and the compound (55) was obtained quantitatively.

[0196] The specified substance (55) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement.

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm): -- 1.33 (9H, s), 6.86 (2H, d), and 7.37 (2H, d) intermediate field (55) ¹HNMR spectrum is shown in drawing 15.

[0197] (3) The 100ml xylene was made to suspend synthetic compound (55)

0.809g (3.53mmol) of intermediate field (56), compound (53) 1.00g (3.53mmol), t-BuONa 0.407g (4.24mmol), and Pd(OAc)₂ 7.9mg (0.035mmol), and under nitrogen-gas-atmosphere mind, carrying out reflux stirring at 120 degrees C, P(t-Bu)₃ 1.4ml of 0.1M was added, and it flowed back for further 4 hours. The reaction solution was cooled radiationally, the filtrate was condensed except for insoluble matter, the silica gel chromatography (WAKO-gelC -300, hexane:THF=20:1) refined, it recrystallized [hexane / acetone-], and 1.44g of white crystals was obtained.

[0198] The specified substance (56) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement (95% of yield).

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm): -- 0.79 (3H, s) and 1.30 (3H, s) -- 1.34 (9H, s), 3.64 (2H, d), 3.76 (2H, d), 5.34 (1H, s), 6.86 (2H, d), and 6.96- 7.06 (7H, m), 7.22 (2H, d), and 7.36 (2H, d) compounds (56) ¹HNMR spectrum is shown in drawing 16.

[0199] (4) The mixed solvent of 10ml of acetone 60ml-water dissolved synthetic compound (56) 1.44g (3.34mmol) and TPPS(p-toluenesulfonic-acid pyridinium) 0.084g (0.334mmol) of intermediate field (57), and it flowed back for 3 hours. Na₂ SO₄ after distilling off a solvent, extracting with toluene and washing with saturation brine It dried in the top. The silica gel chromatography (WAKO-gel C-300, hexane -> hexane:THF=8:1) refined, and product (57) 0.940g was obtained.

[0200] The specified substance (56) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement (81% of yield).

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm): 1.37 (9H, s), 6.96 (4H, d) and 7.07 (2H, d), 7.16 (2H, m), 7.33 (2H, m), 7.66 (2H, d) and 9.79 (1H, s), compound (57) ¹HNMR spectrum is shown in drawing 17.

[0201] (5) Wash synthetic NaH(60% mineral oil distribution) 9.54mmol of bis(amino styryl) benzenoid ((16) -9) twice by the hexane. Anhydrous THF(tetrahydrofuran) 10ml is made to suspend and phosphonate (58), (1.59mmol), and 50ml of compound (57) 0.940g (2.72mmol) anhydrous THF solutions are dropped over 1 hour on an ice bath and under nitrogen-gas-atmosphere mind. After that, It stirred on the ice bath for 3 hours, and stirred at the room temperature for further 12 hours. Na₂ SO₄ after quenching reaction mixed liquor on little ice, extracting with toluene and washing with saturation brine It dried in the top. The silica gel chromatography (WAKO-gel C-300, toluene) refined the obtained solid-state, it recrystallized [toluene], and 0.856g ((16) -9) of products was obtained.

[0202] The specified substance ((16) -9) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement (66% of yield). This product ¹HNMR spectrum is shown in drawing 18 and the following.

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm): -- 1.37 (18H, s), 6.92 (4H, d), 7.00-7.32 (22H, m),

and 7.42 (4H, d) and 7.98 (2H, s) [0203] 481nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption-maximum wavelength of the toluene solution of this product were 540nm.

[0204] Example 18 <the synthetic example which is bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -8)> [Formula 267]

[0205] (1) It flowed back at 120 degrees C for 3 hours in 200ml of xylene suspension of synthetic 1-BUROMO-4-t-butylbenzene (60) 12.5g (58.7mmol), diphenylamine (59) 9.93g (58.7mmol), Pd(OAc)₂ 263mg (1.17mmol), tris (2-methylphenyl) phosphine 1.43g (4.69mmol), and t-BuONa 8.45g (88.0mmol) of an intermediate product (61). After cooling reaction mixed liquor, water was added to this, it extracted with toluene (3 times), and the organic layer was dried and condensed with anhydrous sodium sulfate. The column chromatography refined the obtained residue and thoria reel amine (61) 18.4g was quantitatively obtained as a colorless crystal.

[0206] The specified substance (61) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement.

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm):1.32 (9H, s), 6.98-7.09 (8H, m), and 7.19-7.27 (6H, m) -- this product ¹HNMR spectrum is shown in drawing 19.

[0207] (2) 27.5g (179mmol) of synthetic phosphorus oxychloride of intermediate field (62) was dropped at DMF 100ml, and it stirred for 5 minutes at 120 degrees

C. The obtained red solution was cooled to the room temperature, and thoria
reel amine (61) 18.0g (59.7mmol) was added. The obtained mixture was stirred
at 80 degrees C. After condensing this reaction mixture under reduced pressure,
it flowed into NaHCO₃ / ice carefully. Ethyl acetate extracts obtained mixture (3
times), and it is Na₂ SO₄ about an organic layer. It dried and condensed. And
the column chromatography refined residue and diaryl amino benzaldehyde (62)
6.69g was obtained as a light yellow crystal.

[0208] The specified substance (62) was identified by this product, ¹HNMR, and
FAB-MS measurement (34% of yield).

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm):1.33 (9H, s), and 6.99 (2H, d), 7.08 (2H, d), 7.17 (3H,
m), 7.33 (4H, m) and 7.66 (2H, d) -- this product ¹HNMR spectrum is shown in
drawing 20.

[0209] (3) Washed synthetic NaH(60% mineral oil distribution)9.54mmol of
bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -8) twice by the hexane,
anhydrous THF10ml was made to suspend, and it stirred on an ice bath and
under nitrogen-gas-atmosphere mind. Compound (58) 1.59mmol and 40ml of
(62) 1.26g (3.82mmol) anhydrous THF solutions were dropped over 15 minutes,
and it stirred on the ice bath after that for 6 hours, and stirred at the room
temperature for further 6 hours. Na₂SO₄ after quenching reaction mixed liquor
on little ice and washing with saturation brine It dried in the top. The silica gel

chromatography (WAKO-gel C-300, toluene) refined, it recrystallized [toluene], and 1.11g ((16) -8) of products was obtained.

[0210] The specified substance ((16) -8) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement (90% of yield). moreover -- this -- ¹HNMR spectrum is shown in drawing 21 and the following.

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm):1.33 (18H, s) and 7.02- 7.07 (10H, m), 7.14 (4H, d), 7.22-7.32 (6H, m), and 7.33 (4H, d) and 7.99 (2H, s) [0211] 479nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption-maximum wavelength of the toluene solution of this product were 535nm.

[0212] Example 19 <the synthetic example which is bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -3)> [Formula 268]

[0213] (1) Although the synthetic specified substance ((16) -3) of intermediate field (64) was compounded First, compound (53) 2.85g compounded like the example 17 (10.1mmol), 4-BUROMO-N.N-dimethylaniline (63) 2.00g (10.0mmol), Dissolving t-BuONa1.20g (12.0mmol) and Pd(OAc)₂ 0.066g (0.29mmol) in xylene 150ml, and flowing back under nitrogen-gas-atmosphere mind Furthermore, after P(t-Bu)₃ 12.0ml (0.40mmol) of 0.1M was dropped, it flowed back for 9 hours. The silica gel chromatography (Wakogel C-300, THF: hexane =1:10) refined, and 2.28g of yellow crystals of the specified substance (64) was obtained.

[0214] The specified substance (64) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement (57% of yield).

¹HNMR(CDCl₃) delta(ppm):0.74 (3H, s), 1.17 (3H, s), 2.89 (6H, s), 3.62 (4H, q), 5.32 (1H, s), 6.72 (2H, d) and 6.86 (7H, m), and 7.20-7.27 (4H, m) -- this product ¹HNMR spectrum is shown in drawing 22.

[0215] (2) Synthetic compound (64) 2.28g (5.71mmol) of intermediate field (65) and 0.133g (0.700mmol) of p-toluenesulfonic-acid monohydrates were dissolved in acetone 300ml and 25ml of water, and it flowed back for 2 hours. An acetone is distilled off and it is Na₂ SO₄. After drying in a top, the silica gel chromatography (Wakogel C-300, toluene) refined and 1.67g of yellow crystals of the specified substance (65) was obtained.

[0216] The specified substance (65) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement (92% of yield).

¹HNMR (CDCl₃) -- delta (ppm):2.97 (6H, s), 6.71 (2H, d) and 6.93 (2H, s), 7.07-7.34 (7H, m), and 7.63 (2H, d) and 9.76 (1H, s) -- this product ¹HNMR spectrum is shown in drawing 23.

[0217] (3) Washed synthetic NaH(60% mineral oil distribution)9.54mmol of bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -3) twice by the hexane, anhydrous THF10ml was made to suspend, and it stirred on an ice bath and under nitrogen-gas-atmosphere mind. Compound (58) 1.59mmol and 70ml of

compound (65) 1.14g (3.60mmol) anhydrous THF solutions were dropped over 15 minutes, and it stirred at the room temperature after that for 12 hours. Na₂SO₄ after quenching reaction mixed liquor on little ice and washing with saturation brine It dried in the top. Except for the source material, it recrystallized [hexane / toluene-] with the alumina column chromatography (300mesh, toluene:THF=5:1), and 1.02g ((16) -3) of specified substance was obtained.

[0218] The specified substance ((16) -3) was identified by this product, ¹HNMR, and FAB-MS measurement (88% of yield). moreover -- the -- ¹HNMR spectrum is shown in drawing 24 and the following.

¹HNMR(DMSO-d₆) delta(ppm): 2.91 (12H, s), 6.75 (4H, d) and 6.88 (4H, s), 6.98-7.13 (7H, m), 7.30 (4H, d), 7.47 (4H, d), 7.59 (2H, d), 8.42 (2H, s) [0219] 499nm and the fluorescence maximum wave length of the visible absorption-maximum wavelength of the toluene solution of this product were 620nm.

[0220] an example 20 -- <the synthetic example [0221] of 1, 4-screw [2-[4-(N-4-methoxypheny-N-phenyl) aminophenyl] ethenyl]-2, 3 and 5, and 6-tetrafluoro benzene (structure expression (40) -1)>

[Formula 269]

[0222] The (2, 3, 5, and 6-tetrafluoro benzene)-1 and 4-diyl-screw (methane phosphonic acid diethyl ester) (47.6mg, 0.105mmol) was added to the

tetrahydrofuran (THF) suspension (3ml) of sodium hydride (the letter of 60% mineral-oil suspension, 104mg, 2.59mmol), and it stirred under the room temperature for 10 minutes. The benzaldehyde (4-N-methoxypheny-N-phenylamino) (108mg, 0.356mmol) was added to this mixture, and it stirred under the room temperature for 5 hours. After adding a methanol (0.5ml) to the obtained mixture, the saturated ammonium chloride solution was added and ethyl acetate extracted 3 times.

[0223] The produced organic layer was dried and filtered with washing and anhydrous sodium sulfate with water and saturation brine. Under reduced pressure of a filtrate, it condensed, the column chromatography (silica gel, an expansion solution:hexane / ethyl acetate = 5/1) refined the obtained residue, and the product ((40) -1) (66.9mg, 85% of yield) was obtained as a yellow orange crystal. In addition, identification of this product ¹HNMR and FAB-MS measurement performed.

[0224] The visible absorption-maximum wavelength of the THF solution of this product was 438nm, and firefly luminescence wavelength was 542nm.

[0225] an example 21 -- <the synthetic example [0226] of 1, 4-screw [2-[4-(N-diphenyl) aminophenyl] ethenyl]-2, 3 and 5, and 6-tetrafluoro benzene (structure expression (40) -2)>

[Formula 270]

[0227] Sodium hydride (letter of 60% mineral-oil suspension, 153mg, 3.84mmol), (2, 3, 5, and 6-tetrafluoro benzene)-1, 4-diyl-screw (methane phosphonic acid diethyl ester) (115mg, 0.256mmol), N, and N-diphenylamino benzaldehyde (245mg, 0.897mmol) is used, and it is an example 20. It compounded by the same approach.

[0228] Consequently, the product (structure expression (40) -2) (150mg, 85% of yield) was obtained as a yellow orange crystal. In addition, identification of this product ¹HNMR and FAB-MS measurement performed.

[0229] The visible absorption-maximum wavelength of the THF solution of this product was 428nm, and firefly luminescence wavelength was 522nm.

[0230] an example 22 -- <the synthetic example [0231] of 1, 4-screw [2-[4-(N-4-methylphenyl-N-phenyl) aminophenyl] ethenyl]-2, 3 and 5, and 6-tetrafluoro benzene (structure expression (40) -3)>

[Formula 271]

[0232] It compounded by the same approach as an example 20 using sodium hydride (the letter of 60% mineral-oil suspension, 160mg, 4.01mmol), (2, 3, 5, and 6-tetrafluoro benzene)-1, the 4-diyl-screw (methane phosphonic acid diethyl ester) (90.3mg, 0.201mmol), and the [4-(N-4-methylphenyl)-N-phenyl] amino benzaldehyde (202mg, 0.702mmol).

[0233] Consequently, the product (structure expression (40) -3) (115mg, 80% of

yield) was obtained as a yellow orange crystal. In addition, identification of this product ¹HNMR and FAB-MS measurement performed.

[0234] The visible absorption-maximum wavelength of the THF solution of this product was 433nm, and firefly luminescence wavelength was 532nm.

[0235] an example 23 -- <the synthetic example [0236] of 1, 4-screw [2-[4-(N-4-t-buthylphenyl-N-phenyl) aminophenyl] ethenyl]-2, 3 and 5, and 6-tetrafluoro benzene (structure expression (40) -4)>

[Formula 272]

[0237] It compounded by the same approach as an example 20 using sodium hydride (the letter of 60% mineral-oil suspension, 185mg, 4.63mmol), (2, 3, 5, and 6-tetrafluoro benzene)-1, the 4-diyl-screw (methane phosphonic acid diethyl ester) (69.7mg, 0.155mmol), and the [4-(N-t-buthylphenyl)-N-phenyl] amino benzaldehyde (203mg, 0.619mmol).

[0238] Consequently, the product (structure expression (40) -4) (74.3mg, 60% of yield) was obtained as a yellow orange crystal. In addition, identification of this product ¹HNMR and FAB-MS measurement performed.

[0239] The visible absorption-maximum wavelength of the THF solution of this product was 433nm, and firefly luminescence wavelength was 532nm.

[0240] an example 24 -- <the synthetic example [0241] of 1, 4-screw [2-[4-(N-4-t-butoxy phenyl-N-phenyl) aminophenyl] ethenyl]-2, 3 and 5, and

6-tetrafluoro benzene (structure expression (40) -5)>

[Formula 273]

[0242] sodium hydride (the letter of 60% mineral-oil suspension, 113mg, 2.83mmol) -- (-- two -- three -- five -- six - tetrafluoro -- benzene --) - one -- four - diyl - a screw (methane phosphonic acid diethyl ester) (45.5mg, 0.101mmol) -- [-- N - four - t - butoxy one -- phenyl --] - N - phenyl --] -- amino -- a benzaldehyde (132mg, 0.385mmol) -- using -- the same approach as an example 20 -- having compounded .

[0243] Consequently, the product (structure expression (40) -5) (54.8mg, 65% of yield) was obtained as a yellow orange crystal. In addition, identification of this product ¹HNMR and FAB-MS measurement performed.

[0244] The visible absorption-maximum wavelength of the THF solution of this product was 435nm, and firefly luminescence wavelength was 537nm.

[0245] an example 25 -- <the synthetic example [0246] of 1, 4-screw [2-[4-N and N-bis(4-methylphenyl) aminophenyl] ethenyl]-2, 3 and 5, and 6-tetrafluoro benzene (structure expression (40) -6)>

[Formula 274]

[0247] It compounded by the same approach as an example 20 using sodium hydride (the letter of 60% mineral-oil suspension, 237mg, 5.78mmol), (2, 3, 5, and 6-tetrafluoro benzene)-1, the 4-diyl-screw (methane phosphonic acid diethyl

ester) (260mg, 0.578mmol), and the [bis--N-(4-methylphenyl)] amino benzaldehyde (522mg, 1.73mmol).

[0248] Consequently, the product (structure expression (40) -6) (241mg, 56% of yield) was obtained as a yellow orange crystal. In addition, identification of this product ¹HNMR and FAB-MS measurement performed.

[0249] The visible absorption-maximum wavelength of the THF solution of this product was 440nm, and firefly luminescence wavelength was 537nm.

[0250] an example 26 -- <the synthetic example [0251] of 1, 4-screw [2-[4-N and N-bis(4-methoxyphenyl) aminophenyl] ethenyl]-2, 3 and 5, and 6-tetrafluoro benzene (structure expression (40) -7)>

[Formula 275]

[0252] It compounded by the same approach as an example 20 using sodium hydride (the letter of 60% mineral-oil suspension, 186mg, 4.65mmol), (2, 3, 5, and 6-tetrafluoro benzene)-1, the 4-diyl-screw (methane phosphonic acid diethyl ester) (110mg, 0.245mmol), and the [bis--N-(4-methoxyphenyl)] amino benzaldehyde (253mg, 0.759mmol).

[0253] Consequently, the product (structure expression (40) -7) (118mg, 62% of yield) was obtained as a yellow orange crystal. In addition, identification of this product ¹HNMR and FAB-MS measurement performed.

[0254] The visible absorption-maximum wavelength of the THF solution of this

product was 446nm, and firefly luminescence wavelength was 560nm.

[0255] Example 27 this example is R1 among the above-mentioned compounds of a general formula [I], and R4. It is a 3-ethoxy phenyl group R6 and R8 It is the example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure, using the compound with a cyano group of following structure-expression (16)-1 as an electron hole transportability luminescent material.

[0256]

[Formula 276]

[0257] First, the 30mmx30mm glass substrate with which the anode plate which consists of ITO with a thickness of 100nm was formed on one front face into the vacuum evaporation system was set. The substrate was approached, the metal mask which has two or more 2.0mmx2.0mm unit openings as a vacuum evaporation mask has been arranged, and the compound of above-mentioned structure-expression (16)-1 was formed as an electron hole transportation layer (*****) in thickness of 50nm under the vacuum of 10^{-4} or less Pa with the vacuum deposition method. The vacuum evaporation rate was carried out in 0.1nm/second.

[0258] Furthermore, Alq3 (tris (eight quinolinol) aluminum) of the following structure expression was vapor-deposited in contact with the electron hole

transportation layer as an electronic transportation ingredient. Alq₃ from -- thickness of this becoming electron transport layer was also set to 50nm, and the vacuum evaporation rate was carried out in 0.2nm/second.

[0259]

[Formula 277]

[0260] The cascade screen of Mg and Ag was adopted as a cathode material, and by vacuum evaporation, this was also formed in the thickness of 50nm (Mg film) and 150nm (Ag film) as vacuum evaporation rate 1nm/a second, and produced the **** organic electroluminescence devices shown in drawing 47 by the example 27.

[0261] Thus, forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of the produced example 27 under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry, as shown in drawing 25, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 620nm. The spectroscopy which used the photodiode array by the Otsuka electronic company as the detector was used for spectrometry. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance is performed, as it is shown in drawing 27, they are 10000 cd/m² at 8V. Brightness was obtained.

[0262] After producing these organic electroluminescence devices, although it

was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 4000 hours until brightness was halved.

[0263] Example 28 this example is R1 among the above-mentioned compounds of a general formula [I], and R4. It is a 3-ethoxy phenyl group R6 and R8 It is the example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure, using the compound with a cyano group of above-mentioned structure-expression (16)-1 as an electronic transportability luminescent material.

[0264] First, the 30mmx30mm glass substrate with which the anode plate which consists of ITO with a thickness of 100nm was formed on one front face into the vacuum evaporation system was set. The substrate was approached, the metal mask which has two or more 2.0mmx2.0mm unit openings as a vacuum evaporation mask has been arranged, and alpha-NPD (alpha-naphthylphenyl diamine) of the following structure expression was formed as an electron hole transportation layer in thickness of 50nm under the vacuum of 10⁻⁴ or less Pa with vacuum evaporation technique. The vacuum evaporation rate was carried out in 0.1nm/second.

[0265]

[Formula 278]

[0266] Furthermore, the compound of above-mentioned structure-expression (16)-1 was vapor-deposited in contact with the electron hole transportation layer as an electronic transportation ingredient. The above-mentioned structure expression (16) Thickness of the electron transport layer (*****) which consists of a compound of -1 was also set to 50nm, and the vacuum evaporation rate was carried out in 0.2nm/second.

[0267] The cascade screen of Mg and Ag was adopted as a cathode material, and by vacuum evaporation, this was also formed in the thickness of 50nm (Mg film) and 150nm (Ag film) as vacuum evaporation rate 1nm/a second, and produced the **** organic electroluminescence devices shown in drawing 47 by the example 28.

[0268] Thus, forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of the produced example 28 under nitrogen-gas-atmosphere condition, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry like an example 28, as shown in drawing 26, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 620nm. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance is performed, as it is shown in drawing 28, they are 8000 cd/m² at 8V. Brightness was obtained.

[0269] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 3500 hours until brightness was halved.

[0270] Example 29 this example is R1 among the above-mentioned compounds of a general formula [I], and R4. It is a 3-ethoxy phenyl group R6 and R8 It is the example which produced the organic electroluminescence devices of double hetero layer structure, using the compound with a cyano group of above-mentioned structure-expression (16)-1 as a luminescent material.

[0271] First, the 30mmx30mm glass substrate with which the anode plate which consists of ITO with a thickness of 100nm was formed on one front face into the vacuum evaporation system was set. The substrate was approached, the metal mask which has two or more 2.0mmx2.0mm unit openings as a vacuum evaporation mask has been arranged, and alpha-NPD of the above-mentioned structure expression was formed as an electron hole transportation layer in thickness of 30nm under the vacuum of 10^{-4} or less Pa with the vacuum deposition method. The vacuum evaporation rate was carried out in 0.2nm/second.

[0272] Furthermore, the compound of above-mentioned structure-expression (16)-1 was vapor-deposited in contact with the electron hole transportation layer as a luminescent material. The above-mentioned structure expression (16) Thickness of the luminous layer which consists of a compound of -1 was also set to 30nm, and the vacuum evaporation rate was carried out in 0.2nm/second.

[0273] Furthermore, it is Alq3 of the above-mentioned structure expression as an electronic transportation ingredient. It vapor-deposited in contact with the luminous layer. Alq3 Thickness was set to 30nm and the vacuum evaporation rate was carried out in 0.2nm/second.

[0274] The cascade screen of Mg and Ag was adopted as a cathode material, and by vacuum evaporation, this was also formed in the thickness of 50nm (Mg film) and 150nm (Ag film) as vacuum evaporation rate 1nm/a second, and produced the **** organic electroluminescence devices shown in drawing 48 by the example 30.

[0275] Thus, forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of the produced example 29 under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 620nm. When the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, they

are 11000 cd/m² at 8V. Brightness was obtained.

[0276] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 5000 hours until brightness was halved.

[0277] Changed to alpha-NPD as an example 30 electron-hole transportability ingredient, and TPD (triphenyl diamine derivative) of the following structure expression was used, and also lamination and the forming-membranes method produced organic electroluminescence devices based on the example 28.

[0278]

[Formula 279]

[0279] The organic electroluminescence devices of this example also presented luminescence of the same red as an example 29. The spectrum was in agreement with the spectrum of the organic electroluminescence devices of an example 29 as a result of spectrometry.

[0280] It is the example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure like the example 27 except this, using the compound of following structure-expression (16)-2 with which example 31 this

example had 3-methoxyphenyl radical in R14, R15, R16, and R17 among the above-mentioned compounds of a general formula [II], and had a cyano group in R19 and R21 as an electron hole transportability luminescent material.

[0281]

[Formula 280]

[0282] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere condition, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry, as shown in drawing 29, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 650nm. The spectroscope which used the photodiode array by the Otsuka electronic company as the detector was used for spectrometry. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance is performed, as it is shown in drawing 31, they are 1200 cd/m² at 9.5V. Brightness was obtained.

[0283] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 200 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 1000 hours until brightness was halved.

[0284] It is the example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure like the example 28 except this, using the compound of above-mentioned structure-expression (16)-2 with which example 32 this example had 3-methoxyphenyl radical in R14, R15, R16, and R17 among the above-mentioned compounds of a general formula [II], and had a cyano group in R19 and R21 as an electronic transportability luminescent material.

[0285] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere condition, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry like an example 28, as shown in drawing 30, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 650nm. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance is performed, as it is shown in drawing 32, they are 600 cd/m² at 10.5V. Brightness was obtained.

[0286] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 200 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 700 hours until brightness was halved.

[0287] It is the example which produced the organic electroluminescence devices of double hetero layer structure like the example 29 except this, using the compound of above-mentioned structure-expression (16)-2 with which example 33 this example had 3-methoxyphenyl radical in R14, R15, R16, and R17 among the above-mentioned compounds of a general formula [II], and had a cyano group in R19 and R21 as a luminescent material.

[0288] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere condition, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 650nm. When the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, they are 1800 cd/m² at 8.5V. Brightness was obtained.

[0289] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 200 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 1500 hours until brightness was halved.

[0290] Changed to alpha-NPD as an example 34 electron-hole transportability

ingredient, and TPD (triphenyl diamine derivative) of the above-mentioned structure expression was used, and also lamination and the forming-membranes method produced organic electroluminescence devices based on the example 32.

[0291] The organic electroluminescence devices of this example also presented luminescence of the same red as an example 32. The spectrum was in agreement with the spectrum of the organic electroluminescence devices of an example 33 as a result of spectrometry.

[0292] It is the example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure like the example 27 except this, using the compound of following structure-expression (16)-3 with which example 35 this example had 3-dimethylaminophenyl radical in R27 and R30 among the above-mentioned compounds of a general formula [III], and had a cyano group in R32 and R34 as an electron hole transportability luminescent material.

[0293]

[Formula 281]

[0294] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry, as shown in drawing 33, it

obtained the spectrum which has a luminescence peak in 640nm. The spectroscopy which used the photodiode array by the Otsuka electronic company as the detector was used for spectrometry. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, as shown in drawing 35, the brightness of 6000 cd/m² was obtained by 8V.

[0295] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 3800 hours until brightness was halved.

[0296] It is the example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure like the example 28 except this, using the compound of above-mentioned structure-expression (16)-3 with which example 36 this example had 3-dimethylaminophenyl radical in R27 and R30 among the above-mentioned compounds of a general formula [III], and had a cyano group in R32 and R34 as an electronic transportability luminescent material.

[0297] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere condition, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was

red, and as a result of performing spectrometry like an example 28, as shown in drawing 34, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 640nm. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance is performed, as it is shown in drawing 36, they are 5300 cd/m² at 8V. Brightness was obtained.

[0298] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere mind, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 3200 hours until brightness was halved.

[0299] It is the example which produced the organic electroluminescence devices of double hetero layer structure like the example 29 except this, using the compound of above-mentioned structure-expression (16)-3 with which example 37 this example had 3-dimethylaminophenyl radical in R27 and R30 among the above-mentioned compounds of a general formula [III], and had a cyano group in R32 and R34 as a luminescent material.

[0300] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was

red, and as a result of performing spectrometry, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 640nm. When the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, they are 6800 cd/m² at 8V. Brightness was obtained.

[0301] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere condition, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 4500 hours until brightness was halved.

[0302] Changed to alpha-NPD as an example 38 electron-hole transportability ingredient, and TPD (triphenyl diamine derivative) of the above-mentioned structure expression was used, and also lamination and the forming-membranes method produced organic electroluminescence devices based on the example 36.

[0303] The organic electroluminescence devices of this example also presented luminescence of the same red as an example 36. The spectrum was in agreement with the spectrum of the organic electroluminescence devices of an example 36 as a result of spectrometry.

[0304] Example 39 this example is an example which produced the organic

electroluminescence devices of single hetero structure like the example 27 except this, using the compound of following structure-expression (16)-4 which had a non-permuted naphthyl group in R40 and R43, and had a cyano group for the non-permuted phenyl group in R41 and R42 among the above-mentioned compounds of a general formula [IV] R45 and R47 as an electron hole transportability luminescent material.

[0305]

[Formula 282]

[0306] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was yellow, and as a result of performing spectrometry, as shown in drawing 37, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 578nm. The spectroscopy which used the photodiode array by the Otsuka electronic company as the detector was used for spectrometry. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, as shown in drawing 40, the brightness of 6500 cd/m² was obtained by 8V.

[0307] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere mind, component degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The

current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 4000 hours until brightness was halved.

[0308] Example 40 this example is an example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure like the example 28 except this, using the compound of above-mentioned structure-expression (16)-4 which had a non-permuted naphthyl group in R40 and R43, and had a cyano group for the non-permuted phenyl group in R41 and R42 among the above-mentioned compounds of a general formula [IV] R45 and R47 as an electronic transportability luminescent material.

[0309] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was yellow, and as a result of performing spectrometry like an example 39, as shown in drawing 38, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 578nm. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance is performed, as it is shown in drawing 41, they are 5900 cd/m² at 8V. Brightness was obtained.

[0310] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere mind, component

degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 3500 hours until brightness was halved.

[0311] Example 41 this example is an example which produced the organic electroluminescence devices of double hetero layer structure like the example 29 except this, using the compound of above-mentioned structure-expression (16)-4 which had a non-permuted naphthyl group in R40 and R43, and had a cyano group for the non-permuted phenyl group in R41 and R42 among the above-mentioned compounds of a general formula [IV] R45 and R47 as a luminescent material.

[0312] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was yellow, and as a result of performing spectrometry, as shown in drawing 39, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 578nm. When the electrical-potential-difference-measurement of luminance is performed, as it is shown in drawing 42, they are 7500 cd/m² at 8V. Brightness was obtained.

[0313] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere mind, component

degradation was not observed. Moreover, initial brightness 300 cd/m² The current value was energized uniformly and continuation luminescence was carried out, and when carrying out forcible degradation, it was 5000 hours until brightness was halved.

[0314] Changed to alpha-NPD as an example 42 electron-hole transportability ingredient, and TPD (triphenyl diamine derivative) of the above-mentioned structure expression was used, and also lamination and the forming-membranes method produced organic electroluminescence devices based on the example 40.

[0315] The organic electroluminescence devices of this example also presented luminescence of the same yellow as an example 40. The spectrum was in agreement with the spectrum of the organic electroluminescence devices of an example 40 as a result of spectrometry.

[0316] Example 43 this example is R1 among the above-mentioned compounds of a general formula [I], and R4. Non-permuted phenyl group R2 and R3 It is the example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure like the example 28 except this, using the compound with t-butyl of following structure-expression (16)-8 as an electronic transportability luminescent material.

[0317]

[Formula 283]

[0318] Forward bias direct current voltage was applied to the organic electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was orange, and as a result of performing spectrometry like an example 39, as shown in drawing 43, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 580nm. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, they are 300 cd/m² at 8V. Brightness was obtained.

[0319] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere mind, component degradation was not observed.

[0320] Example 44 this example is R1 among the above-mentioned compounds of said general formula [I], and R4. It is a non-permuted phenyl group R2 and R3. It is the example which produced the organic electroluminescence devices of single hetero structure like the example 43 except this, using the compound with a tertiary butoxy radical of following structure-expression (16)-9 as an electronic transportability luminescent material.

[0321]

[Formula 284]

[0322] Forward bias direct current voltage was applied to the organic

electroluminescence devices of this example under nitrogen-gas-atmosphere mind, and the luminescence property was evaluated. The luminescent color was red, and as a result of performing spectrometry like an example 39, as shown in drawing 44, it obtained the spectrum which has a luminescence peak in 628nm. Moreover, when the electrical-potential-difference-measurement of luminance was performed, they are 15 cd/m² at 7.5V. Brightness was obtained.

[0323] After producing these organic electroluminescence devices, although it was left for one month under nitrogen-gas-atmosphere mind, component degradation was not observed.

[0324]

[Function and Effect of the Invention] The 1st and 2nd compounds of this invention can be effectively used depending on the substituent introduced as an organic luminescent material which shows strong luminescence of yellow - red or green - red, it is the matter which has a high glass transition point and the high melting point, and it excels in electric, thermal, or chemical stability, and it is amorphous and a vitreous state can be formed easily, and also have sublimability and can also form the uniform amorphous film with vacuum deposition etc. while excelling in thermal resistance. Moreover, the compound of this invention can be manufactured by the general and efficient approach through the synthetic intermediate field of this invention.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is ¹HNMR spectrum Fig. of the bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -1) of this invention.

[Drawing 2] It is ¹HNMR spectrum Fig. of the bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -2) of this invention.

[Drawing 3] It is ¹HNMR spectrum Fig. of the bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -4) of this invention.

[Drawing 4] 4-[N as a synthetic intermediate product of this invention, and N-JI (4-methoxypheny) amino] It is ¹HNMR spectrum Fig. of a benzaldehyde (structure expression (27) -2).

[Drawing 5] It is ¹HNMR spectrum Fig. of N as a synthetic intermediate product of this invention, and N-JI (4-methoxypheny) aniline (structure expression (36) -2).

[Drawing 6] The N-(1-phenyl)-N-(4-ethoxy phenyl) aniline as synthetic intermediate field of this invention (structure expression (36) -1) (it is ¹HNMR spectrum Fig.)

[Drawing 7] It is ¹H NMR spectrum Fig. of 2 as a synthetic intermediate product of this invention, and 5-JI (bromomethyl) tele phthalonitrile (structure expression (35a)).

[Drawing 8] It is ¹H NMR spectrum Fig. of N-(p-toluyI)-N as a synthetic intermediate product of this invention, and N-diphenylamine (structure expression (36) -6).

[Drawing 9] 4-[N-(p-toluyI)-N-phenylamino] as a synthetic intermediate product of this invention It is ¹H NMR spectrum Fig. of a benzaldehyde (structure expression (27) -6).

[Drawing 10] It is ¹H NMR spectrum Fig. of the bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -6) of this invention.

[Drawing 11] N as synthetic intermediate field of this invention, N - (it is ¹H NMR spectrum Fig. of p-toluyI-N-phenylamine (structure expression (36) -7).)

[Drawing 12] 4-[N as a synthetic intermediate product of this invention, and N-JI (p-toluyI) amino] It is ¹H NMR spectrum Fig. of a benzaldehyde (structure expression (27) -7).

[Drawing 13] It is ¹H NMR spectrum Fig. of the bis(amino styryl) benzenoid (structure expression (16) -7) of this invention.

[Drawing 14] Acetal compound as synthetic intermediate field of this invention (structure expression (53)) It is ¹H NMR spectrum Fig.

[Drawing 15] Compound as synthetic intermediate field of this invention (structure expression (55)) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 16] Acetal compound as synthetic intermediate field of this invention (structure expression (56)) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 17] Aldehyde compound as a synthetic intermediate product of this invention (structure expression (57)) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 18] Bis(amino styryl) benzenoid of this invention (structure expression (16) -9) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 19] Amine compound as synthetic intermediate field of this invention (structure expression (61)) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 20] Aldehyde compound as a synthetic intermediate product of this invention (structure expression (62)) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 21] Bis(amino styryl) benzenoid of this invention (structure expression (16) -8) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 22] Acetal compound as synthetic intermediate field of this invention (structure expression (64)) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 23] Aldehyde compound as a synthetic intermediate product of this invention (structure expression (65)) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 24] Bis(amino styryl) benzenoid of this invention (structure expression (16) -3) It is ¹HNMR spectrum Fig.

[Drawing 25] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the example 27 of this invention.

[Drawing 26] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 28.

[Drawing 27] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 27.

[Drawing 28] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 28.

[Drawing 29] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 31.

[Drawing 30] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 32.

[Drawing 31] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 31.

[Drawing 31] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 32.

[Drawing 32] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 32.

[Drawing 33] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 35.

[Drawing 34] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 36.

[Drawing 35] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 35.

[Drawing 36] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 36.

[Drawing 37] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 39.

[Drawing 38] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 40.

[Drawing 39] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 41.

[Drawing 40] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 39.

[Drawing 41] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 40.

[Drawing 42] It is the electrical-potential-difference-brightness property Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 41.

[Drawing 43] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 43.

[Drawing 44] It is the emission spectrum Fig. of the organic electroluminescence devices by the **** example 44.

[Drawing 45] It is the important section outline sectional view of the organic electroluminescence devices based on this invention.

[Drawing 46] It is the important section outline sectional view of organic electroluminescence devices besides ****.

[Drawing 47] It is the important section outline sectional view of electroluminescence devices besides ****.

[Drawing 48] It is the important section outline sectional view of electroluminescence devices besides ****.

[Drawing 49] It is the block diagram of the multi or the full color flat-surface display using **** organic electroluminescence devices.

[Description of Notations]

1 [-- A protective coat, 5, 5a, 5b / -- An organic layer, 6 / -- An electron hole transportation layer, 7 / -- An electron transport layer, 8 / -- A power source, 10 / -- An electron hole transportation layer, 11 / -- A luminous layer, 12 / -- An electron transport layer, 14 / -- A luminance-signal circuit, 15 / -- A control circuit, 20 / -- Luminescence light, A B C, D / -- Organic electroluminescence devices] -- A substrate, 2 -- A transparent electrode (anode plate), 3 -- Cathode, 4